

PARENT COOPERATION TREAT

PCT

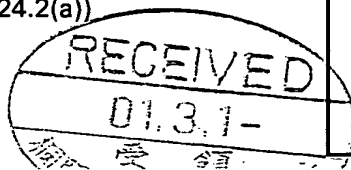
From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF RECEIPT OF
RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

To:

CHIBA, Yoshihiro
Shinjuku Maynds Tower 16F
1-1, Yoyogi 2-chome
Shibuya-ku, Tokyo 151-0053
JAPON



Date of mailing (day/month/year) 06 February 2001 (06.02.01)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference 00P361GAWO00	International application No. PCT/JP00/09133

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

NGK INSULATORS, LTD. (for all designated States except US)
ISHIKAWA, Shuhei et al (for US)

International filing date : 22 December 2000 (22.12.00)
Priority date(s) claimed : 24 December 1999 (24.12.99)
22 March 2000 (22.03.00)

Date of receipt of the record copy
by the International Bureau : 19 January 2001 (19.01.01)

List of designated Offices :

EP : DE,FR,GB,IT
National : CN,KR,US

ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase
☒ confirmation of precautionary designations
☒ requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Châmbettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer:

Masashi HONDA

Telephone No. (41-22) 338.83.38



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

CHIBA, Yoshihiro
Shinjuku Maynds Tower 16F
1-1, Yoyogi 2-chome
Shibuya-ku, Tokyo 151-0053
JAPON

**NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT**

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

Date of mailing (day/month/year) 29 March 2001 (29.03.01)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference 00P361GAWO00	
International application No. PCT/JP00/09133	
International publication date (day/month/year) Not yet published	
Applicant NGK INSULATORS, LTD. et al	International filing date (day/month/year) 22 December 2000 (22.12.00) Priority date (day/month/year) 24 December 1999 (24.12.99)

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
24 Dec 1999 (24.12.99)	11/368108	JP	23 Febr 2001 (23.02.01)
22 Marc 2000 (22.03.00)	2000/80833	JP	02 Marc 2001 (02.03.01)

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Taïeb Akremi

Telephone No. (41-22) 338.83.38

P A T E N T COOPERATION TREATY

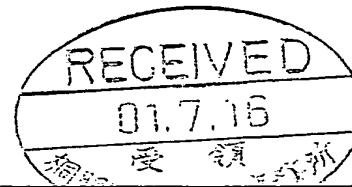
PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

CHIBA, Yoshihiro
Shinjuku Maynds Tower 16F
1-1, Yoyogi 2-chome
Shibuya-ku, Tokyo 151-0053
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 05 July 2001 (05.07.01)		
Applicant's or agent's file reference 00P361GAWO00		IMPORTANT NOTICE
International application No. PCT/JP00/09133	International filing date (day/month/year) 22 December 2000 (22.12.00)	Priority date (day/month/year) 24 December 1999 (24.12.99)
Applicant NGK INSULATORS, LTD. et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:
KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:
CN,EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on
05 July 2001 (05.07.01) under No. WO 01/48816

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

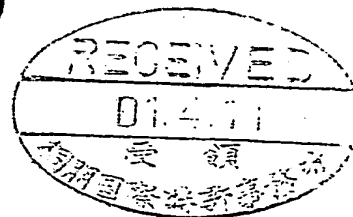
If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

特 許 協 力 条 約

発信人 日本国特許庁 (国際調査機関)



出願人代理人

千葉 剛宏

殿

あて名

〒 151-0053

東京都渋谷区代々木2丁目1番1号

新宿マインズタワー16階

桐朋国際特許事務所

PCT

国際調査報告又は国際調査報告を作成しない旨
の決定の送付の通知書

(法施行規則第41条)

[PCT規則44.1]

発送日

(日.月.年)

10.04.01

出願人又は代理人

の書類記号

00P361GAW000

今後の手続きについては、下記1及び4を参照。

国際出願番号

PCT/JP00/09133

国際出願日

(日.月.年)

22.12.00

出願人 (氏名又は名称)

日本碍子株式会社

1. ☒ 国際調査報告が作成されたこと、及びこの送付書とともに送付することを、出願人に通知する。

PCT19条の規定に基づく補正書及び説明書の提出

出願人は、国際出願の請求の範囲を補正することができる (PCT規則46参照)。

いつ 補正書の提出期間は、通常国際調査報告の送付の日から2月である。

詳細については添付用紙の備考を参照すること。

どこへ 直接次の場所へ

The International Bureau of WIPO

34, chemin des Colombettes

1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22)740.14.35

詳細な手続については、添付用紙の備考を参照すること。

2. ☐ 国際調査報告が作成されないこと、及び法第8条第2項 (PCT17条(2)(a)) の規定による国際調査報告を作成しない旨の決定をこの送付書とともに送付することを、出願人に通知する。

3. ☐ 法施行規則第44条 (PCT規則40.2) に規定する追加手数料の納付に対する異議の申立てに関して、出願人に下記の点を通知する。

☐ 異議の申立てと当該異議についての決定を、その異議の申し立てと当該異議についての決定の両方を指定官庁へ送付することを求める出願人の請求とともに、国際事務局へ送付した。

☐ 当該異議についての決定は、まだ行われていない。決定されしだい出願人に通知する。

4. 今後の手続： 出願人は次の点に注意すること。

優先日から18月経過後、国際出願は国際事務局によりすみやかに国際公開される。出願人が公開の延期を望むときは、国際出願又は優先権の主張の取下げの通知がPCT規則90の2.1及び90の2.3にそれぞれ規定されているように、国際公開の事務的な準備が完了する前に国際事務局に到達しなければならない。

出願人が優先日から30月まで (官庁によってはもっと遅く) 国内段階の開始を延期することを望むときは、優先日から19月以内に、国際予備審査の請求書が提出されなければならない。

国際予備審査の請求書若しくは、後にする選択により優先日から19箇月以内に選択しなかった又は第II章に拘束されないため選択できなかったすべての指定官庁に対しては優先日から20月以内に、国内段階の開始のための所定手続を取らなければならない。

名称及びあて名

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

権限のある職員

特 許 庁 長 官

4 R

7 1 2 8

電話番号 03-3581-1101 内線 3425

P C T

国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)
[P C T 1 8 条、P C T 規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号	0 0 P 3 6 1 G A W 0 0 0	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(P C T / I S A / 2 2 0) 及び下記 5 を参照すること。	
国際出願番号 P C T / J P 0 0 / 0 9 1 3 3	国際出願日 (日.月.年) 2 2 . 1 2 . 0 0	優先日 (日.月.年) 2 4 . 1 2 . 9 9	
出願人 (氏名又は名称) 日本碍子株式会社			

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条 (P C T 1 8 条) の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない (第 I 欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している (第 II 欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第47条 (P C T 規則38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 8 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
Int. cl⁷ H01L23/373

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
Int. cl⁷ H01L23/373

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2001年
日本国登録実用新案公報 1994-2001年
日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 11-67991, A (住友電気工業株式会社) 9. 3月. 1999 (09. 03. 99) 請求項1-15, 段落 [0025] - [0027], 段落 [0043] - [0062], 図1-7 (ファミリーなし)	1, 2, 4-8, 11- 15, 18-30, 35- 65
X	JP, 4-329845, A (ペシネ・ルシエルシュ) 18. 11 月. 1992 (18. 11. 92) & EP, 504532, A1	1, 3, 5-17, 20- 25, 44-50, 57, 58, 65
Y	同 上	26-30, 51-56

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

28. 03. 01

国際調査報告の発送日

10.04.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

市川 裕 司

4R

7128

電話番号 03-3581-1101 内線 3425

E P . U S P C T

国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)
〔PCT 18条、PCT規則43、44〕

出願人又は代理人 の書類記号	00P361 GAW000	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/09133	国際出願日 (日.月.年) 22.12.00	優先日 (日.月.年) 24.12.99	
出願人 (氏名又は名称) 日本碍子株式会社			

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT 18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 8 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。


☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. cl. ⁷ H01L23/373			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. cl. ⁷ H01L23/373			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1926-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2001年 日本国登録実用新案公報 1994-2001年 日本国実用新案登録公報 1996-2001年			
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
X	JP, 11-67991, A (住友電気工業株式会社) 9. 3月. 1999 (09. 03. 99) 請求項1-15, 段落 [0025] - [0027], 段落 [0043] - [0062], 図1-7 (ファミリーなし)	1, 2, 4-8, 11- 15, 18-30, 35- 65	
X	JP, 4-329845, A (ペシネ・ルシエルシュ) 18. 11 月. 1992 (18. 11. 92) & EP, 504532, A1	1, 3, 5-17, 20- 25, 44-50, 57, 58, 65	
Y	同 上	26-30, 51-56	
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列举されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献	
国際調査を完了した日 28. 03. 01		国際調査報告の発送日 10.04.01	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 市川 裕 司 印 電話番号 03-3581-1101 内線 3425	

特許協力条約に基づく国際出願願書

00P361GAW000

原本（出願用） - 印刷日時 2000年12月22日（22.12.2000）金曜日 11時49分35秒

0	受理官庁記入欄 国際出願番号.	
0-1		
0-2	国際出願日	
0-3	(受付印)	
0-4	様式-PCT/R0/101 この特許協力条約に基づく国際出願願書は、 右記によって作成された。	PCT-EASY Version 2.91 (updated 10.10.2000)
0-5	申立て 出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されることを請求する。	
0-6	出願人によって指定された受理官庁	日本国特許庁 (R0/JP)
0-7	出願人又は代理人の書類記号	00P361GAW000
I	発明の名称	ヒートシンク材及びその製造方法
II	出願人	出願人である (applicant only)
II-1	この欄に記載した者は	米国を除くすべての指定国 (all designated States except US)
II-2	右の指定国についての出願人である。	
II-4ja	名称	日本碍子株式会社
II-4en	Name	NGK INSULATORS, LTD.
II-5ja	あて名:	467-8530, 日本国 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町 2番56号
II-5en	Address:	2-56, Suda-cho, Mizuho-ku, Nagoya-city, Aichi 467-8530, Japan
II-6	国籍 (国名)	日本国 JP
II-7	住所 (国名)	日本国 JP
II-8	電話番号	052-872-7726
II-9	ファクシミリ番号	052-872-7246

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用) - 印刷日時 2000年12月22日 (22.12.2000) 金曜日 11時49分35秒

00P361GAW000

III-1 III-1-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only)
III-1-2	右の指定国についての出願人である。	
III-1-4ja	氏名(姓名)	石川 修平
III-1-4en	Name (LAST, First)	ISHIKAWA, Shuhei
III-1-5ja	あて名:	467-8530, 日本国 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町 2番56号 日本碍子株式会社内
III-1-5en	Address:	c/o NGK INSULATORS, LTD., 2-56, Suda-cho, Mizuho-ku, Nagoya-city, Aichi 467-8530, Japan
III-1-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-1-7	住所(国名)	日本国 JP
III-2 III-2-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only)
III-2-2	右の指定国についての出願人である。	
III-2-4ja	氏名(姓名)	三井 任
III-2-4en	Name (LAST, First)	MITSUI, Tsutomu
III-2-5ja	あて名:	467-8530, 日本国 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町 2番56号 日本碍子株式会社内
III-2-5en	Address:	c/o NGK INSULATORS, LTD., 2-56, Suda-cho, Mizuho-ku, Nagoya-city, Aichi 467-8530, Japan
III-2-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-2-7	住所(国名)	日本国 JP
III-3 III-3-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only)
III-3-2	右の指定国についての出願人である。	
III-3-4ja	氏名(姓名)	鈴木 健
III-3-4en	Name (LAST, First)	SUZUKI, Ken
III-3-5ja	あて名:	467-8530, 日本国 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町 2番56号 日本碍子株式会社内
III-3-5en	Address:	c/o NGK INSULATORS, LTD., 2-56, Suda-cho, Mizuho-ku, Nagoya-city, Aichi 467-8530, Japan
III-3-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-3-7	住所(国名)	日本国 JP

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本（出願用） - 印刷日時 2000年12月22日（22.12.2000）金曜日 11時49分35秒

00P361GAW000

III-4 III-4-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-4-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-4-4ja III-4-4en III-4-5ja	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	中山 信亮 NAKAYAMA, Nobuaki 467-8530, 日本国 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町 2番56号 日本碍子株式会社内
III-4-5en	Address:	c/o NGK INSULATORS, LTD., 2-56, Suda-cho, Mizuho-ku, Nagoya-city, Aichi 467-8530, Japan
III-4-6 III-4-7	国籍(国名) 住所(国名)	日本国 JP 日本国 JP
III-5 III-5-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-5-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-5-4ja III-5-4en III-5-5ja	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	竹内 広幸 TAKEUCHI, Hiroyuki 467-8530, 日本国 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町 2番56号 日本碍子株式会社内
III-5-5en	Address:	c/o NGK INSULATORS, LTD., 2-56, Suda-cho, Mizuho-ku, Nagoya-city, Aichi 467-8530, Japan
III-5-6 III-5-7	国籍(国名) 住所(国名)	日本国 JP 日本国 JP
III-6 III-6-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-6-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-6-4ja III-6-4en III-6-5ja	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	安井 誠二 YASUI, Seiji 467-8530, 日本国 愛知県 名古屋市 瑞穂区 須田町 2番56号 日本碍子株式会社内
III-6-5en	Address:	c/o NGK INSULATORS, LTD., 2-56, Suda-cho, Mizuho-ku, Nagoya-city, Aichi 467-8530, Japan
III-6-6 III-6-7	国籍(国名) 住所(国名)	日本国 JP 日本国 JP

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用) - 印刷日時 2000年12月22日 (22.12.2000) 金曜日 11時49分35秒

00P361GA7000

IV-1	代理人又は共通の代表者、通知のあて名 下記の者は国際機関において右記のごとく出願人のために行動する。	代理人 (agent)
IV-1-1ja	氏名(姓名)	千葉 剛宏
IV-1-1en	Name (LAST, First)	CHIBA, Yoshihiro
IV-1-2ja	あて名:	151-0053, 日本国 東京都 渋谷区 代々木2丁目1番1号 新宿マインスタワー 16階
IV-1-2en	Address:	Shinjuku Maynds Tower 16F, 1-1, Yoyogi 2-chome, Shibuya-ku, Tokyo 151-0053, Japan
IV-1-3	電話番号	03-3320-1353
IV-1-4	ファクシミリ番号	03-3320-1393
IV-2	その他の代理人	代理人 (agent)
IV-2-1ja	氏名(姓名)	佐藤 辰彦
IV-2-1en	Name (LAST, First)	SATO, Tatsuhiko
IV-2-2ja	あて名:	151-0053, 日本国 東京都 渋谷区 代々木2丁目1番1号 新宿マインスタワー 16階
IV-2-2en	Address:	Shinjuku Maynds Tower 16F, 1-1, Yoyogi 2-chome, Shibuya-ku, Tokyo 151-0053, Japan
IV-2-3	電話番号	03-3320-0351
IV-2-4	ファクシミリ番号	03-3320-0716
V	国の指定	
V-1	広域特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)	EP: DE FR GB IT
V-2	国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)	CN KR US
V-5	指定の確認の宣言 出願人は、上記の指定に加えて、規則4.9(b)の規定に基づき、特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされることを宣言する。	
V-6	指定の確認から除かれる国	なし (NONE)
VI-1	先の国内出願に基づく優先権主張	
VI-1-1	先の出願日	1999年12月24日 (24.12.1999)
VI-1-2	先の出願番号	特願平11-368108
VI-1-3	国名	日本国 JP

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本（出願用） - 印刷日時 2000年12月22日（22.12.2000）金曜日 11時49分35秒

00P361GAW000

VI-2	先の国内出願に基づく優先権主張		
VI-2-1	先の出願日	2000年03月22日 (22.03.2000)	
VI-2-2	先の出願番号	特願2000-80833	
VI-2-3	国名	日本国 JP	
VI-3	優先権証明書送付の請求 上記の先の出願のうち、右記の番号のものについては、出願書類の認証謄本を作成し国際事務局へ送付することを、受理官庁に対して請求している。	VI-1, VI-2	
VII-1	特定された国際調査機関 (ISA)	日本国特許庁 (ISA/JP)	
VIII	照合欄	用紙の枚数	添付された電子データ
VIII-1	願書	6	-
VIII-2	明細書	40	-
VIII-3	請求の範囲	11	-
VIII-4	要約	1	00p361gawo00.txt
VIII-5	図面	40	-
VIII-7	合計	98	
VIII-8	添付書類 手数料計算用紙	添付 ✓	添付された電子データ -
VIII-16	PCT-EASYディスク	-	フレキシブルディスク
VIII-18	要約書とともに提示する図の番号	8	
VIII-19	国際出願の使用言語名:	日本語 (Japanese)	
IX-1	提出者の記名押印		
IX-1-1	氏名 (姓名)	千葉 剛宏	
IX-2	提出者の記名押印		
IX-2-1	氏名 (姓名)	佐藤 辰彦	

受理官庁記入欄

10-1	国際出願として提出された書類の実際の受理の日	
10-2	図面:	
10-2-1	受理された	
10-2-2	不足図面がある	
10-3	国際出願として提出された書類を補完する書類又は図面であってその後期間内に提出されたものの実際の受理の日 (訂正日)	
10-4	特許協力条約第11条(2)に基づく必要な補完の期間内の受理の日	
10-5	出願人により特定された国際調査機関	ISA/JP

特許協力条約に基づく国際出願願書

00P361GAW000

原本（出願用） - 印刷日時 2000年12月22日（22.12.2000）金曜日 11時49分35秒

10-6	調査手数料未払いにつき、国際調査機関に調査用写しを送付していない	
------	----------------------------------	--

国際事務局記入欄

11-1	記録原本の受理の日	
------	-----------	--



(12) **EUROPEAN PATENT APPLICATION**
published in accordance with Art. 158(3) EPC

(43) Date of publication:
29.11.2000 Bulletin 2000/48

(51) Int. Cl.⁷: **C04B 41/88**

(21) Application number: 99971789.5

(86) International application number:
PCT/JP99/06304

(22) Date of filing: 11.11.1999

(87) International publication number:
WO 00/27776 (18.05.2000 Gazette 2000/20)

(84) Designated Contracting States:
AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU
MC NL PT SE

(30) Priority: 11.11.1998 JP 32102198
11.06.1999 JP 16549999
22.06.1999 JP 17489599

(71) Applicant:
Advanced Materials International Company, Ltd.
Fuji-shi, Shizuoka 416-2266 (JP)

(72) Inventors:
• KAWAMURA, Noriaki
Advanced Materials Int. Co., Ltd
Fuji-shi, Shizuoka 416-2266 (JP)

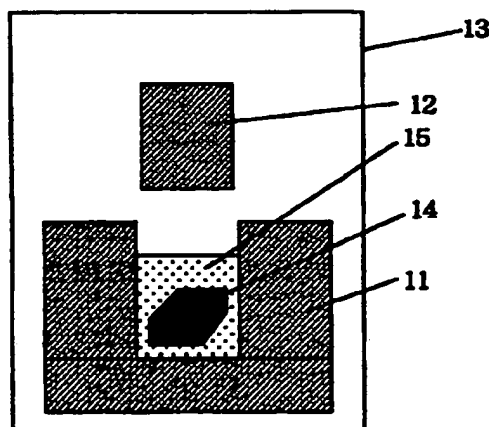
• TSUSHIMA, Eiki
Advanced Materials Int. Co., Ltd
Fuji-shi, Shizuoka 416-2266 (JP)
• SUZUKI, Nobuyuki
Shizuoka 411-0943 (JP)

(74) Representative:
Winter, Brandl, Fűrmiss, Hübner, Röss,
Kaiser, Polte
Partnerschaft
Patent- und Rechtsanwaltskanzlei
Alois-Steinecker-Strasse 22
85354 Freising (DE)

(54) **CARBON-BASED METAL COMPOSITE MATERIAL, METHOD FOR PREPARATION THEREOF AND USE THEREOF**

(57) According to the present invention, there is provided a carbon-based metal composite material comprising a carbonaceous matrix and a metal component dispersed in said carbonaceous matrix, wherein at least 90 volume percent of the pores of the carbonaceous matrix is substituted with said metal component, and the content of said metal component is 35% or less based on the total volume of said carbon-based metal composite material; a method of producing a carbon-based metal composite material wherein impregnation of the carbon formed body with molten metal under pressure is carried out by pre-heating said carbon formed body and then impregnating the open pores of the carbon formed body with molten metal under a pressure of at least 200kg/cm² of the cross-sectional area of the plunger; and a substrate-shaped formed body for an electronic component comprising a carbon-based metal composite material.

Figure 1



Description

FIELD OF THE INVENTION

5 [0001] The present invention relates to a novel carbon-based metal composite material, a method for its production and various applications using said carbon-based metal composite material. In more detail, it relates to a carbon-based metal composite material comprising a carbonaceous matrix and metal components dispersed in said carbonaceous matrix, a method of impregnating a carbon material with metal components, and uses of a carbon-based metal composite material, such as high thermal conductivity-low thermal expansivity substrates for packaging semi-conductors, 10 astronautical components or general industrial structural materials having excellent specific strength and specific rigidity, heat resistant materials such as for gas turbines, and electrical contact materials having excellent sliding characteristics.

BACKGROUND OF THE INVENTION

15

[0002] Conventional metal composite materials containing carbon materials are produced by dispersing and orientating carbon particles or carbon fibers, as reinforcing materials, in a metal component matrix. Furthermore, there have been adopted production methods according to the so-called powder metallurgy method using graphite powder and metal powder as starting materials.

20

[0003] These types of metal-carbon composite materials each use carbon materials to try to improve the characteristics of the metal component as the parent material for the composite material, and should be called metal-based carbon composite materials having a metal component as the parent material. Such materials having a much larger volume of carbon than metal component have not been realised, and these materials are therefore themselves limited in their performance.

25

[0004] On the other hand, carbon materials have been widely used as result of their excellent heat resistance and workability. However, they have many points that need to be improved such as being brittle, having low strength, being easily damaged, having low oxidation resistance, being difficult to plate, and having low heat conductivity. One reason for this is that, with the exception of special carbon materials, carbon materials generally have pores, as a result of which the electrical, heat and chemical properties naturally possessed by carbon are not fully exhibited.

30

[0005] It has been attempted to improve the characteristics of carbon materials by filling the pores of the carbon material with metal material thereby forming a carbon-metal composite. For example, a material having some of the pores substituted with molten copper, copper alloy or silver has been proposed in order to improve the electrical characteristics of carbon materials. However, it was impossible to obtain a material having a large portion of the pores substituted with metal, and its performance was not sufficient.

35

[0006] In general, carbon materials and molten metals have poor wettability, and it was almost impossible in previous studies to impregnate the pores of carbon materials with molten metal components. Although the wettability was improved at high temperatures, casting impregnation at high temperatures resulted in a reaction between the carbon component and the metal component. This resulted in a deterioration in the carbon material, with the problem that it was impossible to obtain the characteristics of a metal-based carbon composite material.

40

[0007] In other words, the production of a composite by the impregnation of a carbon material with metal components by a production method according to the conventionally proposed conditions and operations results in a reaction at the interface between the carbon component and the metal component and the generation of the metal carbide. This had, for example, the ill effect of these two components peeling away from each other, and a carbon-based metal composite material having excellent strength and other properties had not been developed.

45

[0008] Along with the technical development of this type of metal-carbon composite materials, there has been an increase in the amount of heat generated by electronic devices as a consequence of their improved performance and capacity, and there has been a focus on carbon-based metal composite materials having a high proportion of carbon component and having excellent strength as a high thermal conductivity-low thermal expansivity material effective for heat removal. The development of these materials is now eagerly anticipated.

50

DISCLOSURE OF THE INVENTION

[0009] A first objective of the present invention is, in light of the above-mentioned problems with the techniques developed to date, to provide a carbon-based metal composite material which maintains a high degree of heat resistance and high thermal conductivity as well as having a controlled thermal expansivity and excellent strength. 55

[0010] A second objective of the present invention is to provide a method of producing a carbon-based metal composite material comprising impregnating a molten metal into the pores of a carbon formed body whilst inhibiting reactions between carbon and the metal.

[0011] Furthermore, a third objective of the present invention is to provide a material for an electronic component having a high thermal conductivity and a controlled thermal expansivity useful for the removal of heat from an electronic component.

[0012] A fourth objective of the present invention is to provide a carbon-based metal composite material provided with an insulator film.

[0013] The inventors of the present invention have found, as result of extensive research into achieving the above-described objectives, that a high thermal conductivity-low thermal expansivity composite material can be obtained by impregnating the pores of a carbon material with a metal component under molten and pressurized conditions, and that the above-described objectives can be achieved using the same. It was on the basis of these findings that the present invention was completed.

[0014] In other words, the present invention firstly relates to a carbon-based metal composite material comprising a carbonaceous matrix and a metal component dispersed in said carbonaceous matrix characterised in that

(1) at least 90 volume percent of the pores of said carbonaceous matrix are substituted with said metal component, and

(2) the content of said metal component is 35% or less based on the total volume of said carbon-based metal composite material.

[0015] Furthermore, the present invention secondly relates to a method of producing a carbon-based metal composite material comprising impregnating a carbon formed body with a molten metal by contacting said carbon formed body with said molten metal under pressure, characterised in that

(1) said carbon formed body is pre-heated to a temperature at or above the melting point of said molten metal under an inert gas atmosphere; and

(2) said pre-heated carbon formed body is impregnated with said molten metal under a pressure of at least 200kg per cm² of the cross-sectional area of the plunger.

[0016] Furthermore, the present invention thirdly relates to a substrate-shaped formed body for an electronic component characterised in that it is formed from a carbonaceous metal composite material comprising a carbonaceous matrix and a metal component dispersed in said carbonaceous matrix, wherein at least 90 volume percent of the pores of said carbonaceous matrix are substituted with said metal component and the content of said metal component is 35% or less based on the total volume of said carbonaceous metal composite material.

[0017] Furthermore, the present invention fourthly relates to a carbon-based metal composite material provided with an insulator film obtained by covering the surface of a carbonaceous metal composite material with an insulator material, the carbonaceous metal composite material having a carbonaceous matrix and a metal component dispersed in said carbonaceous matrix, wherein at least 90 volume percent of the pores of said carbonaceous matrix are substituted with said metal component and the content of said metal component is 35% or less based on the total volume of said carbonaceous metal composite material.

BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS

[0018]

Figure 1 is a schematic view showing the basic construction of production apparatus used in the method of producing the carbon-based metal composite material of the present invention.

Figure 2 is a conceptual view of a 2D carbon composite material used in Example 4.

Figure 3 is a cross-sectional view of an electronic component showing an example of a use of a carbon-based metal composite material substrate of the present invention.

Figures 4-1 and 4-2 are plane and elevated views of a cooling component produced in Example 7 having a substrate on both sides.

Figures 5-1 and 5-2 are side and plane views of a cooling component produced in Example 8 having cooling fins on one side.

Figure 6 is a cross-sectional view of an electronic component showing a use of a carbon-based metal composite material provided with an alumina film produced in Example 9.

PREFERRED EMBODIMENTS OF THE PRESENT INVENTION

[0019] The carbon-based metal composite material of the present invention comprises a carbonaceous matrix and

a metal component dispersed in said carbonaceous matrix, wherein the metal component fills at least 90 volume percent of the pores of the carbonaceous matrix, and has a content of 35% or less based on the total volume of the carbon-based metal composite material.

[0020] Furthermore, one characteristic of the method of producing a carbon-based metal composite material of the present invention is that it comprises a step (1) of pre-heating a carbon formed body and a step (2) of pressurized impregnation of molten metal.

CARBONACEOUS MATRIX

[0021] The carbonaceous matrix which composes the carbon-based metal composite material of the present invention is a carbon material which can form a composite together with a metal component. Examples of carbon materials which can be used for the carbonaceous matrix include (a) general carbon materials produced with normally employed starting materials and methods; (b) carbon fiber-reinforced carbon composite materials obtained by forming a composite from carbon fibres and a carbon-containing compound; and (c) a pressure-formed body comprising carbon powder, artificial graphite powder or carbon fibers. Graphite-type carbon crystals, namely, carbon materials having specific pore structure such as pore diameter and pore volume are preferred. In this specification, these carbon materials prior to formation of a composite with the metal shall, where necessary, be referred to as a "carbon formed body". The shape of the carbon formed body can be freely selected according to the shape required in the use of the carbon-based metal composite material.

(a) General carbon materials

The carbon materials used as the carbonaceous matrix of the carbon-based metal composite materials of the present invention may be ones comprising amorphous carbon or graphite-type crystals, or mixtures of these. However, ones comprising graphite-type crystals are excellent in terms of uniformity of pore characteristics and are particularly preferred from the viewpoint of inhibiting the reactions with the metal component. It is important to select a graphite-type crystal having an average interplanar spacing d_{002} measured by X-ray diffraction of 0.340nm or less.

Examples of carbon formed bodies for use as the carbonaceous matrix include ones having a porosity prior to impregnation with the metal component of less than 40 volume percent preferably, 2 to 35 volume percent and further preferably, 5 to 25 volume percent. Namely, ones wherein the volume percentage of the carbonaceous part is at least 60 volume percent preferably at least 75 volume percent.

If the porosity were to exceed 40 volume percent there is the concern that the metal component content may increase excessively making it difficult to provide both the required thermal conductivity and thermal expansivity. The pore diameter of the carbon material is not limited and may be distributed over a wide range stretching from submicrometers to several hundred microns. Examples of carbon materials include ones having an average diameter of, preferably 0.1 μm to 10 μm , further preferably, 0.1 μm to 3 μm . When the average pore diameter is thus within a specific range, the impregnation of the metal component is facilitated according to specific production conditions making it possible to increase the filling percentage to 90 volume percent or more, and furthermore to 95 volume percent or more, thereby substantially achieving a filling percentage of 100 volume percent. The filling percentage refers to the volume proportion occupied by metal impregnated into the pores.

Furthermore, it is preferred that the density of the carbon formed body prior to impregnation of the metal component is in the range of 1.4 g/cm³ to 2 g/cm³, preferably 1.6 g/cm³ to 2 g/cm³, and particularly 1.7 g/cm³ to 1.9 g/cm³. If the density is less than 1.4 g/cm³, there is the ill effect of the thermal expansivity becoming excessively large due to a high metal percentage. On the other hand, if the density exceeds 2 g/cm³, the metal impregnation-filling percentage is reduced. There is the problem that even if almost all the pores could be filled, the metal percentage would be small whereby a thermal expansivity useful for a substrate for an electronic component (4x10⁻⁶/°C or more) cannot be achieved.

Specific examples of carbon materials for use as the carbonaceous matrix include those of electrodes used in electrolytic furnaces for electric furnace steel production, aluminium refining etc., electrodes for electric discharge machining, tools for producing silicon semiconductors or optical fibers, and carbon formed bodies used as heat resistant structural materials.

These kind of carbon materials can be produced via the main steps of mixing, forming, calcination and graphitisation etc. using a filler and binder as starting materials. Calcined oil coke, calcined pitch coke, natural graphite, calcined anthracite, carbon black etc. can be freely used as the filler, and coal tar pitch, coal tar, and synthetic resins etc. can be freely used as the binder. The operation and conditions for each of the mixing, forming, calcination and graphitisation steps may be as those employed conventionally, and can be appropriately determined to give the above-mentioned desired shape and properties. The above-mentioned graphite-type crystals can be obtained by calcination treatment in an inert gas at a temperature of 2500 °C or more, particularly, 2800 °C or more.

Extrusion, moulding and cold isostatic pressing (CIP method) can be recited as examples of methods of forming the carbon formed body. Extrusion and moulding are particularly preferred.

(b) Carbon fiber-reinforced carbon composite materials

Carbon fiber-reinforced carbon composite materials are carbon/carbon composite materials (referred to hereunder as "c/c composite materials" where necessary) constructed from carbon fibers and carbon-containing compounds. The carbon fibers are used as filler. There are provided one-dimensional, two dimensional, and three-dimensional forms of composite materials according to the manner of orientation of the fibers, starting with composite materials using fibers orientated in one direction (1D), and moving from flat arranged fibers (2D) to composite materials using 3D wovens. The type of material can be freely selected according to the use.

The c/c composite material used as the carbonaceous matrix of the carbon-based metal composite material of the present invention may also be one made from amorphous carbon, but one in which the carbon fibers or the carbon matrix or both comprise graphite-type crystals is preferred. Furthermore, in terms of density, one having a density of 1.6 g/cm³ to 2 g/cm³, preferably, 1.7 g/cm³ to 1.9 g/cm³ may be used.

The pore structure of the c/c composite material may be the same as that of the afore-mentioned general carbon materials. The average pore diameter is in the range of 0.5µm to 5µm, preferably 1µm to 2µm. It is preferred to have a porosity of 5% to 30%, preferably 10% to 25%.

As mentioned above, the c/c composite material may be produced by any method. It may be produced by impregnating a carbon matrix precursor such as a phenol resin or oil pitch between the carbon fibers, followed by forming and calcination in an inert gas, normally at a temperature of 1000 °C or greater. If the calcination temperature is controlled to be 2500 °C or greater, particularly, 2800 °C or greater, a graphitised crystal-containing carbon material can be obtained.

Furthermore, as a method of avoiding the re-impregnation of the matrix precursor required in conventional methods, a method comprising impregnating carbon fibers at a heat treatment temperature of 500 °C or higher with a liquid having dispersed therein carbon powder containing at least 50 weight percent of raw coke powder followed by volatilising the solvent and shaping and calcinating the carbonaceous matrix precursor-containing carbon fibers under pressure (reference is made to Japanese Patent Application Laid-Open No.247563/1991) may be employed whereby a carbon material having properties favourable for the carbonaceous matrix of the carbon-based metal composite material of the present invention can be obtained.

A specific example of a carbon fiber-reinforced carbon composite material is shown in Figure 2. In the figure, the fibers are orientated in a unilateral direction, and the respective layers are stacked with the fiber direction at 0° and 90°. Length is indicated by the xy direction, and depth by the z direction.

(c) An example of a pressure-formed body comprised of carbon powder/artificial graphite or carbon fibers is a carbon composite body obtained by filling an iron vessel with graphite powder, carbon fibers etc. and applying pressure. It has a porosity controlled to be between 10 and 30 volume percent and is useful as a starting material for the carbonaceous matrix of the present invention. Specific examples of carbon formed bodies are ones containing at least 10 percent on a volume basis of graphite particles having a length between 1.0mm and 3mm, or ones containing at least 10 percent on a volume basis of pitch carbon fibers having a fiber length of 0.02mm to 5mm, or ones containing at least 10 percent on a volume basis of graphite particles having a length of 0.1mm to 3mm and pitch carbon fibers having a fiber length of 0.02mm to 5mm. These carbon formed bodies are particularly useful as the carbonaceous matrix for the substrate-shaped formed body for an electronic component discussed hereafter.

METAL COMPONENT

[0022] The metal component composing the carbonaceous metal composite material of the present invention may be freely selected according to the use. Examples include magnesium, aluminium, titanium, iron, cobalt nickel, copper, zinc, silver, tin and alloys of each metal.

[0023] Preferred metal components include aluminium, copper, silver and alloys of these metals. Pure metal components of aluminium or copper are particularly preferred. These metal components are favourable for providing the specific thermal conductivity and thermal expansivity considered to be one of the characteristics of the carbonaceous metal composite material of the present invention.

CARBON-BASED METAL COMPOSITE MATERIAL

[0024] The carbon-based metal composite material of the present invention comprises the above-described carbonaceous matrix and a metal component dispersed in said carbonaceous matrix, wherein 1) at least 90 volume percent of the pores of the carbonaceous matrix are filled with the metal component; and 2) the content thereof is 35

percent or less based on the total volume of the carbonaceous metal composite material.

[0025] It is preferred that the above-described metal component fills the pores of the carbonaceous matrix such that it occupies at least 90 volume percent, particularly 95 volume percent of all open pores. It is further preferred that substantially 100 volume percent of the pores are filled. If the filling percentage is less than 90 volume percent, the required properties such as thermal conductivity cannot be satisfied. With the conventionally proposed methods of impregnating molten metal, a value of 70 volume percent was achieved at best; there was no disclosure of a material having a high filling percentage. The carbonaceous matrix is amorphous carbon, graphite-type crystalline carbon and a mixture of these. Graphite-type carbon is particularly preferred. The form in which the metal component exists in the carbonaceous matrix can be observed using a scanning electron microscope.

[0026] Next, the content of the metal component in the carbon-based metal composite material of the present invention is 35 volume percent or less, preferably 30 volume percent or less, and further preferably, between 5 and 25 volume percent. If the content exceeds 35 volume percent, it becomes difficult to achieve a low thermal expansivity even though a high thermal conductivity may be achieved.

[0027] The density of the above-described carbon-based metal composite material of the present invention will vary depending on the type of metal component, but when aluminium is used as the impregnate, the density is in the range of 2 g/cm³ to 2.4 g/cm³, preferably 2.1 g/cm³ to 2.2 g/cm³, whereby a material having a thermal conductivity of 200W/(m.K) or more, and a coefficient of a thermal expansion of 12x10⁻⁶/°C or less, particularly from 4x10⁻⁶/°C to 12x10⁻⁶/°C can be provided.

[0028] There are no particular limitations with respect to the shape of the carbon-based metal composite of the present invention. It can be formed into various shapes at the stage of production depending on the use. For example, it may be formed into plates, blocks, sheets, films, granules, powder, fibers and woven fibers, non-woven fibers and shaped parts such as arbitrarily machined parts.

METHOD OF PRODUCING THE CARBON-BASED METAL COMPOSITE MATERIAL

[0029] Next, a method of producing the carbon-based metal composite material of the present invention shall be described.

According to the present invention, there is provided a method of producing a carbon-based metal composite material comprising the pressurised impregnation of a carbon formed body with molten metal by contacting the carbon formed body with the molten metal under pressure, the method including the following steps (1) and (2).

(1) step of pre-heating the carbon formed body in an inert gas atmosphere at a temperature at least as high as the melting point of the molten metal; and

(2) step of impregnating the pre-heated carbon formed body with said molten metal at a pressure of 200kg per cm² of the cross-sectional area of the plunger.

[0030] Any carbon material suitable for the above-described carbonaceous matrix can be used as the carbon formed body. A specific example of a carbon formed body is one having a density of 1.4 g/cm³ to 2 g/cm³, and a porosity of 50% or less, preferably, 35% or less, and further preferably, 5% to 25%.

[0031] Specifically, in the above-described step (1), the carbon formed body is placed into a mold and pre-heated in an inert gas atmosphere. Argon gas, nitrogen gas etc. may be used as the inert gas atmosphere. In the pre-heating, the temperature is maintained at or above, particularly at least 100 °C above, and preferably of 100°C to 250 °C above the melting point of the metal component. By proceeding via this step (1), the pores of the carbon material can be sufficiently impregnated with the metal whilst inhibiting reactions at the interface between carbon and the metal.

[0032] Next, in step (2), the metal component is preferably heated to a temperature from 50 °C to 250 °C higher than the melting point of the metal component and supplied to the mold to contact it with the above-mentioned pre-heated carbon formed body. A pressure of at least 200kg per cm² of the cross-sectional area of the plunger is applied to impregnate the above-mentioned carbon formed body with the molten metal. In the case that aluminium is used in step (2), increasing the temperature of the molten metal to more than 200 °C above the melting point results in a tendency for deliquescent aluminium carbide to be formed whereby a practical composite material cannot be obtained. Furthermore, if the pressure is less than 200kg/cm², the impregnation of the metal cannot be carried out efficiently with a resulting decrease in the filling percentage.

[0033] The impregnation of the molten metal in the method of producing the carbon-based metal composite material of the present invention is characterised by the use of the plunger for a squeeze casting of a pressure applicator of a standard press to inject the molten metal into the carbon formed body placed inside the mold and directly apply pressure thereto. It is thereby possible to obtain a composite material having a high filling percentage which was not possible with the conventional gas pressure methods carried out in the presence of a gas inside a pressure-resistant vessel. It is also possible to obtain a large scale composite material which was not possible with the prior art.

After the completion of step (2), a carbon-based metal composite material can be obtained via steps such as cutting etc.

In the case of a metal having a high melting point the impregnation of the metal component can also be carried out by forming holes in the carbon formed body and injecting the molten metal into the holes.

5 [0034] A specific example of apparatus used in the method of producing a carbon-based metal composite material according to the present invention is shown in Figure 1.

[0035] In Figure 1, 11 is a metal mold, 12 is a plunger and 13 is a press. A carbon formed body 4 is placed inside the mold 11, and is then pre-heated in argon gas according to the above-described step (1). Molten metal heated to a specific temperature is then supplied, and plunger 12 is used to apply pressure to the molten metal inside the metal
10 mold and maintain these same conditions for a specified period of time. After the elapse of the specific period of time, the whole mass of metal is removed from the mold and cut to obtain a metal-impregnated carbon-based composite material.

SUBSTRATE-SHAPED FORMED BODY FOR AN ELECTRONIC COMPONENT

15 [0036] Next (1) a substrate-shaped formed body useful as a heat disperser for an electronic component, and (2) a substrate-shaped formed body provided with a cooling device shall be described as uses of the carbon-based metal composite material of the present invention.

[0037] In electronic components which are provided with an electronic circuit supporting substrate for an electronic circuit comprising semiconductor elements, resistors, transformers, condensers and wiring and with a base substrate for supporting the electronic circuit supporting substrate; most of the heat generated by the electronic circuit is transferred from the electronic circuit supporting substrate and base substrate to a cooling device and is finally released to the atmosphere or to a cooling liquid. Conventionally, aluminium, copper or alloys of these were used as the base substrate material, but there is a problem of warping and peeling as a result of a difference in thermal expansivity with the
25 electronic circuit.

[0038] The carbon-based metal composite material of the present invention has a thermal conductivity of at least 150W/(m.K) and a thermal expansivity in the range of $4 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ to $12 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$; it has improved substrate characteristics compared to the above-described metal base substrates thus solving the above-discussed problems.

[0039] The substrate-shaped carbon formed body for electronic components according to the present invention preferably has a density of at least 2 g/cm³. Specifically, in the case of aluminium- or aluminium alloy-impregnated substrate-shaped carbon formed bodies, a density of 2 g/cm³ to 2.4 g/cm³ is suitable, whereas in the case of a copper- or copper alloy-impregnated substrate-shaped carbon formed body, a density in the range of 2.3 g/cm³ to 4.6 g/cm³ is suitable.
30

[0040] A specific example of an electronic component including a substrate-shaped carbon formed body comprising a carbon-based metal composite material according to the present invention and used as a heat disperser for an electronic circuit is shown in Figure 3.
35

[0041] In the figure, a substrate 30 comprising the carbon-based metal composite material of the present invention is joined to a ceramic insulating substrate 32 via an adhesive layer 31. Synthetic resin, solder, metal brazing material etc. is used for the adhesive layer. A circuit, circuit elements and parts 33 are provided on the ceramic insulating substrate 32. A large amount of heat is generated from the circuit, circuit elements and parts which is transferred to the substrate 30 and released to a cooling device (not shown in the figure) joined to the bottom of the substrate 30.
40

[0042] Next, a substrate-shaped formed body provided with a cooling device for an electronic component shall be described as a use of the carbon-based metal composite material of the present invention.

[0043] The substrate-shaped formed body provided with a cooling device is obtained by simultaneously casting a carbon formed body and cooling device into an integrated body via the metal component at the time of impregnating the carbon formed body with the metal component. The cooling device is made up of passages such as pipes for passing a liquid or fins for gas cooling. Specific examples of substrate-shaped formed bodies provided with cooling devices are shown in Figures 4-1 to 5-2. Figures 4-1 and 4-2 show a plane view and elevation view of a cooling part having a substrate-shaped formed body on both sides. Two substrate-shaped formed bodies 40 are prepared, and a semi-circular groove A is cut into each of the formed bodies. A pipe 41 is fitted into the groove, and then the two bodies are provisionally fastened together. The substrate-shaped bodies and the cooling device are integrated together by filling the space between the formed bodies and the pipe with molten metal at the same time as impregnating the pores with molten metal. In this way, the cooling performance can be improved.
45

[0044] Figures 5-1 and 5-2 show another embodiment consisting of a substrate for an electronic component having fins 51 joined to the bottom of a substrate-shaped formed body 50. The surface of a metal mold 52 is coated with a mold-release material made of carbon or BN powder, and then the carbon formed body 50 and thin plates 51 are placed in the mold. The thin plates 51 are metal plates having a melting point higher than the carbon formed body or the metal to be impregnated, and form the fin blades. They are fitted into grooves provided in the carbon-formed body. The top of
50

Figure 5-1 is a front view showing the electronic component substrate having the fins 51 joined to the carbon formed body 50 and placed in the metal mold 52 ready for impregnation with molten metal; Figure 5-2 is a plane view thereof.

CARBON-BASED METAL COMPOSITE MATERIAL PROVIDED WITH AN INSULATING FILM.

[0045] As another use of the carbon-based metal composite material of the present invention, there can be provided the same with its surface covered with an insulating material. Examples of insulating materials include plastic materials such as polyimide resins, polyaminobismaleimides, bismaleimides, polyetheramides, polyamideimides, epoxys, polyurethanes, polyesters and ceramic materials such as alumina, aluminium nitride, silica, silicon nitride, titanium oxide, zirconia and glasses. The thickness of the covering layer of insulating material is 0.6mm or less, preferably 0.01mm to 0.1mm. There are no limitations regarding the method of forming the covering layer, and any method may be used. It is preferably formed by a sputtering method, coating method, CVD method, solgel method etc..

[0046] The carbon-based metal composite material of the present invention has a Young's modulus of 30GPa or less, a thermal conductivity of 100W/(m.K) or more, and a thermal expansivity of $12 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ or less. An insulator-covered carbon-based metal composite material obtained using this can be used as an electronic device with a circuit laid directly on the insulating film. This application example is shown in Figure 6. In figure 6, the carbon-based metal composite material of the present invention is used as a substrate and an insulating film 62 is provided thereon via a joining layer 61; an electronic circuit may be provided thereon. In the figure, 64 is an electronic component such as a semiconductor element, a resistor or a condenser.

[0047] To describe it in more detail, the carbon-based metal composite material of the present invention has a similarly low thermal expansivity and a Young's modulus one order lower compared to a composite material substrate produced by impregnating a powder sintered body of silicon carbide, alumina, tungsten etc. with metal; and the top thereof can thus be covered with a ceramics electrically insulating film having good film properties and resistant to heat cycles. An electronic circuit can be provided on top of this insulating film, whereby an electronic component having excellent thermal conductivity can be produced.

EFFECT OF THE INVENTION

[0048] The carbon-based metal composite material of the present invention has, by virtue of the above-described construction, at least 90 volume percent, particularly 95 volume percent up to 100 volume percent of the pores of the carbonaceous matrix filled with the metal component. Furthermore, the metal component content is controlled to be no more than 35% based on the total volume of the carbon-based metal composite material. By virtue of this composition, the carbon-based metal composite material of the present invention has a high thermal conductivity/low thermal expansivity characteristic, and can be provided as a substrate-shaped carbon formed body for an electronic component. Furthermore, in this type of carbon-based metal composite material, the pores can be impregnated with the molten metal at a high filling percentage by carrying out the impregnation of the pores of the carbon formed body with the molten metal instantaneously at high pressure; furthermore, in the case of aluminium impregnation, it is realised by inhibiting reactions between aluminium and carbon which was not possible with conventional techniques.

EXAMPLES

[0049] Hereunder, the present invention shall be specifically described by Examples and Comparative Examples. The present invention is, however, not to be limited in any way by these Examples etc..

[0050] Measurement methods and test methods were used for the evaluation of the quality and performance of the carbon-based metal composite materials prepared according to the Examples and Comparative Examples.

1) Impregnation of the Metal Component

The state of dispersion of the metal component was observed at a magnification ratio of x500 using a scanning electron microscope S2300 made by Hitachi Ltd.

2) Porosity

The porosity of the carbon formed body prior to impregnation with the metal component is a calculated value calculated assuming the carbon density to be 2.1 g/cm^3 from its apparent density.

3) Metal filling percentage

$$[(\text{Porosity prior to metal filling} - \text{porosity after metal filling}) / \text{porosity prior to metal filling}] \times 100$$

4) Specific heat

Measured at room temperature in a flow of dry nitrogen at a temperature rise of $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$. according to the DSC

method (DSC: differential scanning calorimeter) using a DSC-2 made by the Perkin Elmer company. Sapphire was used for the comparative calibration.

5) Density

Measured according to the Archimedes method using an electronic analysis balance AEL-200 made by Shimadzu Corporation.

6) Bending strength

The bending strength of a prepared strength test piece was measured using a precision universal testing machine AG-500 made by Shimadzu Corporation. It was measured under the following conditions: test piece size 4mm x 4mm x 8mm; span distance 60mm; crosshead lowering speed 0.5mm/min..

7) Thermal conductivity

The thermal conductivity was determined as the multiple of the thermal diffusivity, specific heat and density. The thermal diffusivity was measured at 25 °C according to the laser flash method using a TC-7000 made by Shinku Riko Kabushiki Kaisha. Ruby laser light (excitation voltage: 2.5kV; 1 homogenising filter and 1 attenuation filter) was used for the irradiation.

8) Thermal expansivity (Coefficient of thermal expansion)

The thermal expansivity from room temperature to 300 °C was measured using thermal analysis device 001, TD-5030 made by the Max Science company.

Example 1

[0051] Commercially available artificial graphite I (density: 1.85 g/cm³, porosity: 12%, bending strength: 3.5kg/cm², thermal conductivity: 100W/(m.K), thermal expansivity: 3.8x10⁻⁶/°C) was cut into a block having a length of 30mm, a width of 30mm and a depth of 10mm. The block was placed in an iron mold and heated in argon gas to 750 °C for 90 minutes. Next, molten aluminium obtained by heating pure aluminium granules to 750 °C was added into the mold, and a pressure of 500kg per cm² of the cross-sectional area of the plunger(the ram) was applied. This state was maintained for 30 minutes to impregnate the pores of the artificial graphite with aluminium and form the composite. After cooling, the whole mass of aluminium was removed and cut to obtain a carbon-based aluminium composite material having an aluminium content of 12 volume percent.

[0052] The nature of the impregnation of the aluminium in the thus obtained carbon-based aluminium composite material was observed by the above-described method. It could be confirmed that the pores had been 100% substituted by the aluminium, and that the aluminium was dispersed uniformly in the carbonaceous matrix.

[0053] A strength test piece was prepared and subjected to a bending test. The result was a bending strength of 8kg/mm². The results are shown in Table 1. It can be seen from this that the bending strength had increased to twice the bending strength (4kg/mm²) of the artificial graphite I not impregnated with aluminium.

[0054] Furthermore, the thermal conductivity and the thermal expansivity were respectively measured by the above-described methods. These results are shown in Table 1. The thermal conductivity had increased to 200W/(m.K), which is twice that of the artificial graphite I (100W/(m.K), and the thermal expansivity had risen from 3.8x10⁻⁶/°C to 10.8x10⁻⁶/°C.

Example 2

[0055] Commercially available artificial graphite I was cut into a block having a length of 30mm, a width of 30mm and a depth of 10mm. The block was placed into a carbon mold and heated in argon gas to 1200 °C for 120 minutes. Next, molten copper obtained by heating pure copper granules to 1200 °C was added into the mold, and a pressure of 1000kg per cm² of the cross-sectional area of the ram was applied. This state was maintained for 30 minutes to impregnate the pores of the artificial graphite with copper and form the composite. After cooling, the whole mass of copper was removed and cut to obtain a carbon-based copper composite material having a copper content of 14 volume percent.

[0056] The nature of the copper impregnation in the thus obtained carbon-based copper composite material was observed by the above-described method. No pores were observed, and it could be confirmed that the copper was dispersed uniformly in the carbonaceous matrix.

[0057] A strength test piece was prepared and subjected to a bending test. The result of the test is shown in Table 1. It can be seen from this that the bending strength had increased to twice the bending strength (4kg/mm²) of the commercial product I.

[0058] Furthermore, the thermal conductivity and the thermal expansivity were respectively measured by the above-described methods. These results are shown in Table 1. The thermal conductivity had increased to 220W/(m.K), which is more than twice that of the commercial, product I (100W/(m.K), and the thermal expansivity had risen from 3.8x10⁻⁶/°C to 9.9x10⁻⁶/°C.

Example 3

[0059] Holes of a diameter of 10mm and a depth of 100mm were formed in a block of commercially available artificial graphite I. After vacuum degassing, it was heated in argon gas to 1550 °C for 210 minutes. Pure molten nickel heated to 1650 °C was then filled into the holes. A plunger was then inserted therein whilst blowing the outer surface of the block with argon, and a pressure of 1000kg per cm² of the cross-sectional area of the plunger was applied. This state was maintained for 30 minutes to impregnate the pores of the block of artificial graphite I with nickel. After cooling, the portion of the block impregnated with nickel was removed and cut to obtain a carbon-based nickel composite material having a nickel content of 12 volume percent.

[0060] The nature of the nickel impregnation in the thus obtained carbon-based nickel composite material was observed, and the bending strength, thermal conductivity and thermal expansivity were respectively measured. The nature of the nickel impregnation was observed with the following results: no pores were observed and it could be confirmed that the nickel was dispersed uniformly in the carbonaceous matrix.

[0061] The bending strength had increased to 11kg/mm², which is about three times the bending strength (4kg/mm²) of the commercial artificial graphite I; the thermal conductivity had increased from the 100W/(m.K) of the commercial artificial graphite I to 170W/(m.K), and the thermal expansivity had become 7.5x10⁻⁶/°C compared to the 3.8x10⁻⁶/°C of the commercial artificial graphite I.

These results are shown in Table 1.

Example 4

[0062] A block having a length (xy direction) of 100mm, a width of 100mm, and a depth (z direction) of 250mm was prepared from a carbon fiber (pitch-type)-reinforced carbon composite material produced according to Japanese Patent Application Laid-Open Nos.247563/1991 and 157273/1996 with stacks of fibers orientated at 0° and 90° (hereunder referred to as "2D carbon composite material" (refer to Figure 2)).

[0063] Holes of a diameter of 10mm and a depth of 100mm were formed in the block of 2D carbon composite material. After vacuum degassing, it was heated in argon gas to 1550 °C for 210 minutes. Pure molten nickel heated to 1650°C was then filled into the holes, whilst cooling the outer surface of the block by blowing with argon gas. A pressure of 500kg per cm² of the cross-sectional area of the plunger was applied, and this state was maintained for 30 minutes to impregnate the pores of the block of 2D carbon composite material with nickel. After cooling, the portion of the block impregnated with nickel was removed and cut to obtain a carbon-based nickel composite material.

[0064] The nature of the nickel impregnation was observed; no pores could be observed and it could be confirmed that the nickel was dispersed uniformly in the carbonaceous matrix. The nickel content was 25 volume percent.

[0065] A bending strength test piece was prepared and subjected to a bending test. The result is shown in Table 1. According to this result, the bending strength had increased 2.5 times in the xy plane from 20kg/mm² prior to impregnation to 50kg/mm², and had increased in the z plane from less than 1kg/mm² to 5kg/mm².

[0066] The results of measuring the thermal conductivity are shown in Table 1. The thermal conductivity in the vertical direction with respect to the xy plane, i.e. in the z-axis direction had increased from 8W/(m.K) prior to impregnation to 45W/(m.K), and the thermal conductivity in the direction of the x- or y-axis had increased from 200W/(m.K) prior to impregnation to 250W/(m.K).

[0067] A nickel-impregnated test piece of 10mm length and 3mm in the vertical and horizontal directions was cut, and the surface thereof was covered with nickel to a total thickness of about 10µm using electrolytic plating and non-electrolytic plating. This sample was placed in an air furnace and left at 1000 °C for 1 hour. After cooling, it was removed and observed visually. There was no change other than that the nickel had darkened. On the other hand, a sample of the non-impregnated 2D composite material became reduced in mass to 38% of its original weight.

Comparative Example 1

[0068] A carbon-based aluminium composite having an aluminium content of 9.8 volume percent was obtained in the same way as Example 1 except that the molten aluminium heated to 750 °C was added to the block of commercial artificial graphite I without pre-heating the block of commercial artificial graphite in argon gas. Observation of the nature of the aluminium impregnation showed that there were spaces in the open pores which had not been filled and that no more than 67 volume percent of the pores of the artificial graphite had been substituted with aluminium. The thermal conductivity was 133W/(m.K) and the thermal expansivity was 9.7x10⁻⁶/°C; the thermal conductivity was insufficient.

The results of the evaluation of the properties are shown in Table 1.

Comparative Example 2

[0069] Aluminium impregnation was carried out in the same way as Example 1 except that the pressure was 150kg per cm² of the cross-sectional area of the plunger. It was almost impossible to impregnate any aluminium, and a carbon-based aluminium composite material having satisfactory properties could not be obtained. The aluminium filling percentage was 47 volume percent, and its content was 12%. The thermal conductivity was 121W/(m.K) and the thermal expansivity was $9.3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$.

Comparative Example 3

[0070] An aluminium-impregnated carbon-based aluminium composite was prepared in the same way as Example 1 except that the composition was adjusted to give an aluminium content of 40 volume percent. The results of measuring the bending strength, thermal conductivity and thermal expansivity are shown in Table 1. The aluminium filling percentage was favourable at 100%, but the thermal expansivity was excessively high at $13.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ giving a material of practically no use.

Comparative Example 4

[0071] An aluminium-impregnated carbon-based aluminium composite material was obtained in the same way as Example 1 except that the pre-heating temperature was set to 600 °C which is below the melting point of aluminium. The results of evaluating the properties are shown in Table 1. The aluminium filling percentage was low at 73 volume percent and there were problems with the thermal conductivity.

Comparative Example 5

[0072] A carbon-based aluminium composite material was prepared in the same way as Example 1 except that a carbon formed body (average interplanar spacing $d_{002} = 0.343\text{nm}$) obtained by calcinating needle-shaped coke, pitch and phenol resin for 3 hours at a final temperature of 2000 °C was used instead of artificial graphite. The properties are shown in Table 1.

This carbon formed body produced bubbles and broke up when soaked in water. Furthermore, when 30nm cubes were left in air, they gradually powderised and after about two weeks had completely lost their original shape and become a powder body. It is supposed that this is caused by the formation of aluminium carbide by a reaction between the carbon and aluminium.

TABLE I

	Porosity (Vol.%)	Metal Filling Percentage (Vol.%)	Bending Strength kg/mm ²	Thermal Conductivity W/(m.K)	Thermal Expansivity $\times 10^{-4}/^{\circ}\text{C}$
Basic material: Commercial artificial graphite material I	12	0	4	100	3.8
Example 1: Aluminium Impregnation	0	100	8	200	10.8
Example 2: Copper Impregnation	0	100	8	220	9.9
Example 3: Nickel Impregnation	0	100	11	170	7.5
Comp. Example 1: Aluminium Impregnation	5	67	6	133	9.7
Comp. Example 2: Aluminium Impregnation	8	47	5	121	9.3
Comp. Example 3: Aluminium Impregnation	0	100	10	170	13.5
Comp. Example 4: Aluminium Impregnation	4	73	6	138	9.9
Parent material: Needle-shaped coke formed body	25	0	2	70	1.8
Comp. Example 5: Aluminium Impregnation	0	100	6	131	7.6
Parent Material: 2D Carbon Composite XY direction	25	0	20	200	0
2D Carbon Composite Z direction			<1	8	7
Ex. 4: 2D Carbon Composite + Nickel Impregnation XY direction	0	100	50	250	0
2D Carbon composite + Nickel Impregnation Z direction			5	50	10

Note: "2D Carbon Composite" refers to a composite material produced by layer-stacking with the fibers directed in orthogonal directions; the xy direction is the fiber face, and the z direction is the stacked layer face.

Example 5

[0073] A total of four types of carbon formed bodies, including 3 types of commercially available artificial graphite materials A, B and C, and one type of carbon-fiber/carbon composite material were respectively heated to 760 °C in argon gas for 90 minutes, and placed in molds heated to 500 °C. The molds were filled with pure aluminium melted at 810 °C. A press was used to apply a pressure of 500kg per cm² of the cross-sectional area of the plunger, and this state was maintained for 30 minutes. After cooling, the whole mass of aluminium was removed and cut to obtain a carbon-based aluminium composite material. The aluminium filling percentage ranged from 96 volume percent to 100 volume percent; and the content ranged from 7.7 volume percent to 27 volume percent.

The thermal conductivities, thermal expansivites and bending strengths are shown in Table 2.

TABLE 2

		Density g/cm ³	Thermal Conductivity W/m.K	Thermal Expansivity x10 ⁻⁴ /°C	Bending Strength kg/mm ²	Porosity Vol. %	Metal Filling percentage (Vol. %)
Example 5							
Artificial Graphite A	Post-Impreg.	2.17	340	6	3	1	97
	Pre-Impreg.	1.82	160	1	1	13	0
Artificial Graphite B	Post-Impreg.	2.26	200	7	5	0	100
	Pre-Impreg.	1.53	100	3	2	27	0
Artificial Graphite C	Post-Impreg.	2.17	190	8	10	0	100
	Pre-Impreg.	1.85	100	4	5	12	0
Carbon fiber/carbon composite	Post-Impreg.	2.14	450	11	-	0.3	96
	Pre-Impreg.	1.93	400	7	-	8	0
Comparative Example 6							
Artificial Graphite A	Post-Impreg.	2.07	250	5	2	4	70
	Pre-Impreg.	1.82	160	1	1	13	0

Note: Artificial Graphite A: Maximum Particle Diameter 3mm

Artificial Graphite B: Maximum Particle Diameter 0.8mm

Artificial Graphite C: Maximum Particle Diameter 0.1mm

Carbon fiber/carbon composite: thermal conductivity-value in fiber direction

thermal expansivity-value in direction orthogonal to fiber direction

Comparative Example 6

[0074] A carbon-based aluminium composite material was obtained in the same way as Example 5 except that the pure aluminium melted at 810 °C was added without pre-heating the artificial graphite material A in the mold. The aluminium filling percentage was 70 volume percent, and the aluminium content was 9.1 volume percent. The thermal con-

ductivity, thermal expansivity and bending strength are shown in Table 2. The degree of increase in the thermal conductivity between prior to and after impregnation of this carbon-based composite material was low.

Example 6

[0075] Two types of carbon formed body, commercially available graphite materials A and B, were used. Each carbon formed body was respectively pre-heated to 960 °C in argon gas for 120 minutes, and then placed in a mold heated to 600°C. The mold was then filled with 7-3 brass melted at 960 °C. A pressure of 1000kg per cm² of the cross-sectional area of the plunger was applied, and this state was maintained for 30 minutes to impregnate the carbon formed body with the 7-3 brass and form the composite. After cooling, the whole mass of 7-3 brass was removed and cut to obtain a carbon-based 7-3 brass composite material. The 7-3 brass filling percentage was 94 volume percent and the 7-3 brass content was 12 volume percent and 25 volume percent.

[0076] The results of measuring the thermal conductivity, thermal expansivity and bending strength are shown in Table 3.

TABLE 3

		Density g/cm ³	Thermal Conductivity W/(m.K)	Thermal Expansivity x10 ⁻⁶ /°C	Bending Strength kg/mm ²	Porosity Vol. %	Metal Filling percentage (Vol. %)
Artificial	Post-Impreg.	2.91	200	5	2	0.8	95
Graphite A	Ppe-Impreg.	1.82	160	1	1	13	0
Artificial	Post-Impreg.	3.75	190	6	3	1.6	95
Graphite B	Pre-Impreg.	1.53	100	3	2	27	0

Note: Artificial graphite material A: max. particle diameter 3mm

Artificial graphite material B: max. particle diameter 0.8mm

[0077] The following points were clear from the results of Examples 5 and 6. The thermal conductivity had risen by up to 100W/(m.K) compared to the carbon formed body prior to impregnation, making it possible to achieve a thermal conductivity of 200W/(m.K) or greater which is demanded for the base substrate of an electronic component. Furthermore, it is shown that the thermal expansivity could be freely controlled from 5x10⁻⁶/°C to 11x10⁻⁶/°C by selecting the type of metal or type of carbon formed body. This thermal expansivity is similar to that of silicon (3x10⁻⁶/°C to 4x10⁻⁶/°C), and that of aluminium nitride (4.5x10⁻⁶/°C) or alumina (7x10⁻⁶/°C), which are each mounted on the substrate. Accordingly, a substrate employing the carbon-based metal composite material of the present invention can reduce the amount of thermal stress produced by differences in thermal expansivity between the substrate and electronic components mounted thereon, making it possible to inhibit the generation of defects such as warping and peeling.

Example 7

[0078] Commercially available artificial graphite was cut to prepare two carbon formed bodies of length 100mm, width 100mm and depth 10mm for use as substrates. A semicircular-shaped groove of diameter 12mm was cut into the substrates; a stainless steel pipe of external size 9.5mm and pre-formed to match the grooves was sandwiched and provisionally fixed between the two substrates. This was then placed in a metal mold and pre-heated to 750 °C in argon gas for 90 minutes. Aluminium (JISAC4CH) melt was poured in and cast at a pressure of 500kg/cm². After cooling, it was cut to obtain the substrate-shaped carbon formed body for an electronic component shown in Figure 4. The aluminium filling percentage of the formed body was 99 volume percent and the aluminium content was 12 volume percent; the thermal conductivity and thermal expansivity were 200W/(m.K) and 5x10⁻⁶/°C, respectively.

Example 8

[0079] A substrate produced by subjecting a carbon composite body having carbon fibers orientated in a single direction to cutting orthogonally to the fiber direction was used to provide a carbon formed body of length 50mm, width 50mm and depth 10mm. 20 grooves of length 50mm, width 1mm and depth 2mm were cut into the carbon formed body

at a pitch of 2mm. Thin plates of length 50mm, width 20mm and depth 0.9mm and cut from artificial graphite material were inserted into the grooves. This was then provisionally fitted via a mold-release agent in a mold made from steel material. This was then placed in a mold and pre-heated to 750 °C in argon gas. Aluminium (JISSAC4CH) melt was poured in and cast at a pressure of 500kg/cm². After cooling, it was removed from the mold and cut (refer to Figure 5-1 and Figure 5-2). The aluminium filling percentage was 99 volume percent and the aluminium content was 9 volume percent; the thermal conductivity and the thermal expansivity were 400W/(m.K) and 10x10⁻⁶ /°C, respectively.

Comparative Example 7

[0080] A carbon formed body identical to the carbon formed body of Example 7 was prepared as a substrate, and a substrate-shaped carbon formed body for an electronic component comprising a carbon-based aluminium composite material was obtained in the same way as Example 7 except that the aluminium impregnation was carried out without pre-heating the carbon formed body. The aluminium filling percentage was 40 volume percent the aluminium content was 5 volume percent, the thermal conductivity was 124W/(m.K) and the thermal expansivity was 6x10⁻⁶ /°C.

[0081] In Example 7, observation of a cut face of the carbon formed body with a microscope revealed that the aluminium had completely filled the spaces in the carbon formed body. Furthermore, the gap between the stainless steel pipe and the substrates was filled with aluminium without any spaces thereby achieving integration. In Comparative Example 7, the filling of the spaces of the carbon formed body was not complete, and the integration was not sufficient. The thermal expansivity of the substrates of Examples 7 and 8 was close to that of silicon, alumina and aluminium nitride. Furthermore, there were no spaces at the interface joining the substrates and the cooling pipe or fins resulting in excellent thermal conductivity.

Example 9

[0082] A carbon-based copper composite material produced by impregnating a unidirectionally orientated carbon-fiber carbon composite having a porosity of 8% with molten copper at high pressure according to the method of Example 1 was used to prepare a 30mm substrate piece having a thickness of 3mm (thickness direction is longitudinal direction of fibers). The copper filling percentage was 93 volume percent, the copper content was 7.4 volume percent and the density was 2.6 g/cm³. A metal film mainly comprising molybdenum and chromium and having a thickness of 10 microns was formed on the substrate by plasma spraying: White alumina having a purity of 99.6% and an average particle diameter of 1µm was plasma sprayed onto this metal film to prepare a ceramics film with a total film thickness of 0.1mm with the metal coating. Since pinholes were present in this film, a glass frit was thinly laid on the film and calcined at 900 °C. An aluminium foil of thickness 10µm was laid on this film, and then a copper foil of thickness 0.3µm was stacked on top thereof. It was then treated using a hot press for 30 minutes at 2MPa and 650°C to obtain a copper plated substrate. An example of the use in an electronic component of a carbon-based metal composite material provided with an insulating film is shown in Figure 6. In the figure, a ceramics insulating film 62 is provided on a substrate (60) employing the carbon-based metal composite material via a joining layer (61) of solder. An electronic circuit (63) and electronic parts (64) are directly provided on top of this film.

In order to confirm the electrical insulating properties of the ceramics film, a potential difference of 500V was applied between the carbon-based metal composite material substrate and the copper plate and the electrical resistance was measured using an electrical insulation tester. The electrical resistance was infinitely large thereby confirming the electrical insulating properties of the ceramics film.

Example 10

[0083] The surface of a 10mm carbon-based copper composite material substrate similar to that of Example 9 and having a thickness of 1mm was polished to give an average surface roughness of 0.1µm. A magnetron sputtering device was used to form an alumina film of 0.03mm on the substrate by flowing 10ml per minute of a gas mixture consisting of 9 parts argon gas and 1 part oxygen gas at an atmosphere pressure of 1Pa for 12 hours at a power output of 300W. The temperature of the substrate at this time was 300 °C.

The alumina substrate film was observed with a scanning electron microscope at a magnification ratio of x5000. The film was transparent and glassy. No defects such as pinholes, and cracks were observed.

In order to confirm the heat resistance of this substrate, the step of heating the substrate in air to 400 °C and then allowing it to cool naturally was repeated 5 times, and then the substrate was observed with a scanning electron microscope at a magnification ratio of x5000. No defects such as cracks or pinholes were observed proving that the substrate is heat-resistant at a temperature of 400 °C. Metal was then deposited on the alumina film applied using the magnetron sputtering device, and the dielectric strength of the film was measured by testing the electrical insulating properties of the metal film and carbon-based copper composite material using an electrical insulator tester. The dielectric strength

of the film was between 500V and 650V. Furthermore, the specific resistivity of the film was measured to be at least $10^{12}\Omega\cdot\text{m}$.

Comparative Example 8

[0084] A carbon-based copper composite material provided with a ceramics film was prepared in the same way as Example 10 except that a carbon formed body substrate having a copper filling percentage of 95 volume percent, a copper content of 45 volume percent and a thermal expansivity of $12.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ was used. When the substrate was heated to 250 °C and allowed to cool naturally to room temperature, cracks were observed in the ceramics film as a result of the difference in thermal expansivity between the carbon-based copper composite material and the ceramics film.

INDUSTRIAL APPLICABILITY

[0085] The carbon-based metal composite material of the present invention has at least 90 volume percent of the pores of the carbonaceous matrix substituted with a metal component, and has a metal component content of 35 volume percent or less. Its high thermal conductivity and low thermal expansivity make it useful as a heat disperser for an electronic component. It can also be used as a structural material for astronautical components or a general structural material having excellent specific strength and specific rigidity, and an extremely great industrial contribution has thus been made by the provision of this novel material.

Furthermore, the method of producing a carbon-based metal composite material according to the present invention is also useful as means for providing said composite material, and it is likewise of great industrial use in that it solves the problems associated with molten metal, particularly, aluminium impregnation which was considered as impossible in the prior art.

Claims

1. A carbon-based metal composite material comprising a carbonaceous matrix and a metal component dispersed in said carbonaceous matrix, characterised in that

(1) at least 90 volume percent of the pores of the carbonaceous matrix is substituted with said metal component; and

(2) the content of said metal component is 35% or less based on the total volume of said carbon-based metal composite material.

2. The carbon-based metal composite material according to claim 1 wherein the metal component is at least one metal or an alloy of at least one metal selected from the group consisting of aluminium, magnesium, tin, zinc, copper, silver and nickel.

3. The carbon-based metal composite material according to claim 2 wherein said metal component is at least one pure metal component selected from the group consisting of aluminium, copper and silver.

4. The carbon-based metal composite material according to claim 1 wherein said carbonaceous matrix is a pressure formed body comprising at least one type of carbon material selected from the group consisting of graphite crystalline carbon materials, carbon composite materials reinforced with carbon fibers and/or carbon powder, artificial graphite powder and carbon fibers.

5. The carbon-based metal composite material according to claim 4 wherein the average interplanar spacing \bar{d}_{002} of the graphite crystals of said graphite crystalline carbon material is 0.340nm or less.

6. The carbon-based metal composite material according to claim 1 wherein at least 95 volume percent of the pores of said carbonaceous matrix is substituted with said metal component.

7. The carbon-based metal composite material according to any one of claims 1 to 3, wherein the content of said metal component is 5% to 30% based on the total volume of said carbon-based metal composite material.

8. A method of producing a carbon-based metal composite material comprising impregnating a carbon formed body with a molten metal by contacting said carbon formed body with said molten metal under pressure, characterised by

- (1) pre-heating said carbon formed body in an inert atmosphere to a temperature at least as high as the melting point of said molten metal, and
- (2) impregnating the pre-heated carbon formed body with said molten metal at a pressure of at least 200kg per cm² of the plunger cross-sectional area.

9. The method of producing a carbon-based metal composite material according to claim 8 wherein said carbon formed body is a graphite crystalline carbon material calcinated at a temperature of at least 2500 °C and having an average interplanar spacing d_{002} of 0.340nm or less.
10. The method of producing a carbon-based metal composite material according to claim 8 or claim 9 wherein said carbon formed body has a porosity of 50 volume percent or less.
11. The method of producing a carbon-based metal composite material according to any one of claims 8 to 10 wherein said carbon formed body has a porosity of 5 volume percent to 30 volume percent.
12. The method of producing a carbon-based metal composite material according to claim 8 wherein said pre-heating temperature is at least 100 °C higher than the melting point of said molten metal.
13. The method of producing a carbon-based metal composite material according to claim 8 wherein said impregnation temperature is 50 °C to 250 °C higher than the melting point of said molten metal.
14. A substrate-shaped formed body for an electronic component characterised in that it is formed from a carbon-based metal composite material according to any one of claims 1 to 7 or a carbon-based metal composite material obtained by a method according to any one of claims 8 to 13.
15. The substrate-shaped formed body for an electronic component according to claim 14 wherein said carbon-based metal composite material has a thermal conductivity of at least 150W/(m.K) and a thermal expansivity of $4 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ to $12 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$.
16. The substrate-shaped formed body for an electronic component according to claim 14 or claim 15 wherein said substrate-shaped formed body has a thickness of 0.1mm to 20mm.
17. The substrate-shaped formed body for an electronic component according to any one of claims 14 to 16, wherein said carbon formed body is a cooling device-fitted substrate obtained by integration via metal with a cooling device having a liquid as the cooling medium.
18. A carbon-based metal composite material provided with an insulating film obtained by covering the surface of a carbon-based metal composite material according to any one of claims 1 to 7 or a carbon-based metal composite material obtained by a method according to any one of claims 8 to 13 with an insulating material.
19. The carbon-based metal composite material provided with an insulating film according to claim 18 wherein said insulating material is a plastic or ceramics material.
20. The carbon-based metal composite material provided with an insulating film according to claim 18 or claim 19 wherein the thickness of said covering layer of insulating material is 0.6mm or less.

Figure 1

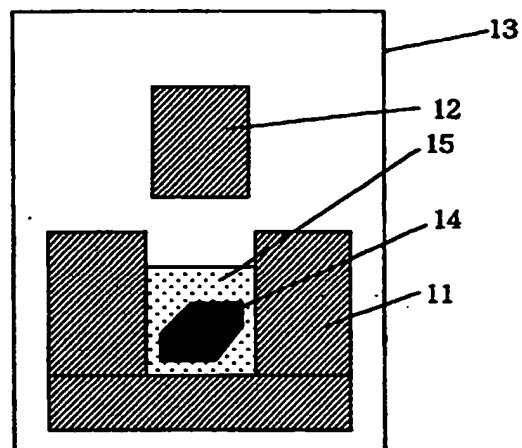


Figure 2

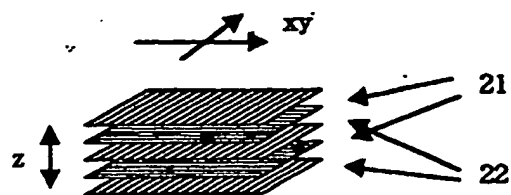


Figure 3

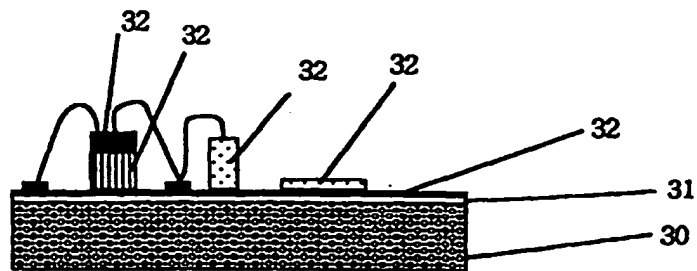


Figure 4 - 1

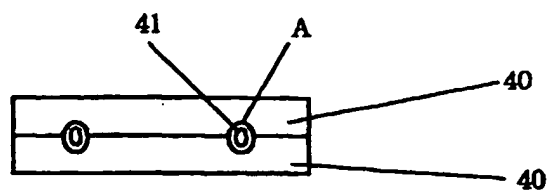


Figure 4 - 2

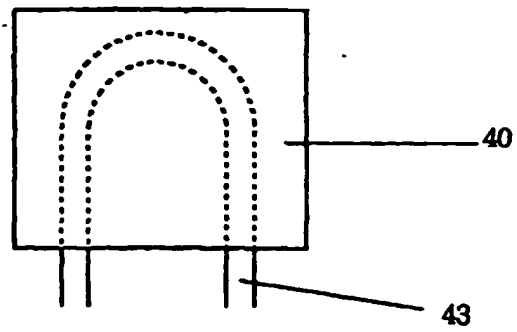


Figure 5 - 1

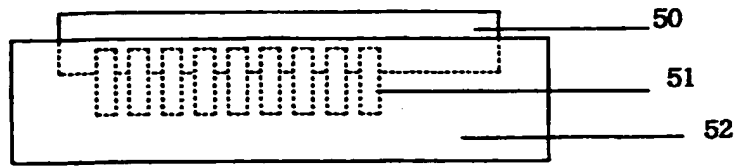


Figure 5 - 2

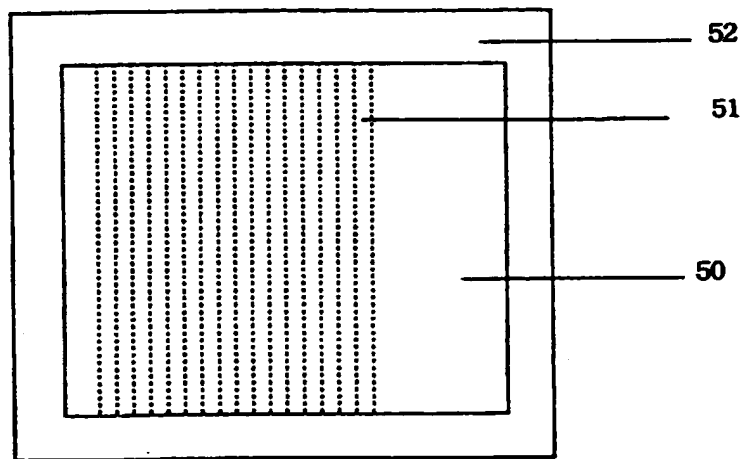
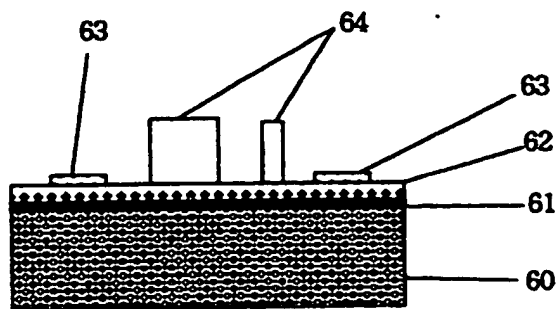


Figure 6



(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001 年 7 月 5 日 (05.07.2001)

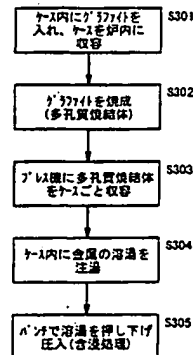
PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/48816 A1

- (51) 国際特許分類: H01L 23/373
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/09133
- (22) 国際出願日: 2000 年 12 月 22 日 (22.12.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願平 11/368108
1999 年 12 月 24 日 (24.12.1999) JP
特願 2000/80833 2000 年 3 月 22 日 (22.03.2000) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本碍子株式会社 (NGK INSULATORS, LTD.) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 56 号 Aichi (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 石川 修平
- (74) 代理人: 千葉剛宏, 外 (CHIBA, Yoshihiro et al.); 〒151-0053 東京都渋谷区代々木 2 丁目 1 番 1 号 新宿インズタワー 16 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): CN, KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (DE, FR, GB, IT).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: HEAT SINK MATERIAL AND METHOD OF MANUFACTURING THE HEAT SINK MATERIAL

(54) 発明の名称: ヒートシンク材及びその製造方法



S301...PUT GRAPHITE IN A CASE, AND STORE THE CASE IN A FURNACE.
S302...BAKE THE GRAPHITE (POROUS SINTERED BODY)
S303...STORE THE POROUS SINTERED BODY AS CONTAINED IN THE CASE IN A PRESS.
S304...POUR A MOLTEN METAL OF A METAL IN THE CASE.
S305...PRESS DOWN THE MOLTEN METAL WITH A PUNCH FOR PRESS FITTING (IMPRESSION TREATMENT)

(57) Abstract: A method of manufacturing a heat sink material, comprising the steps of putting graphite in a case (70) and storing the case in a furnace (Step S301), baking the inside of the furnace (60) so as to manufacture a porous sintered body (12) with graphite (Step S302), taking out the porous sintered body (12) as contained in the case (70) from the furnace (60), and storing the porous sintered body (12) as contained in the case (70) in a recessed part of a press (62) (Step S303), pouring a molten metal (86) of a metal (14) in the case (70) (Step S304), and inserting a punch (84) into the recessed part so as to press down the molten metal (86) in the case (70) for press-fitting (Step S305), whereby the molten metal (86) of the metal (14) is soaked in open porous parts of the porous sintered body (12) by the pressing of the punch (84).

[続葉有]

WO 01/48816 A1



(57) 要約:

ケース(70)内にグラファイトを入れ、該ケースを炉内に収容する(ステップS301)。炉(60)内を焼成して、グラファイトによる多孔質焼結体(12)を作製する(ステップS302)。その後、炉(60)から多孔質焼結体(12)をケース(70)ごと取り出して、プレス機(62)の凹部内に多孔質焼結体(12)をケース(70)ごと収容する(ステップS303)。次に、ケース(70)内に金属(14)の溶湯(86)を注湯した後(ステップS304)、パンチ(84)を凹部内に挿通し、ケース(70)内の前記溶湯(86)を押し下げ圧入する(ステップS305)。このパンチ(84)の押圧処理によって、金属(14)の溶湯(86)は、多孔質焼結体(12)の開気孔部中に含浸されることとなる。

-1-

明 細 書

ヒートシンク材及びその製造方法

5 技術分野

本発明は、例えばＩＣチップから発生する熱を効率よく放熱させるヒートシンクを構成するためのヒートシンク材及びその製造方法に関する。

背景技術

- 10 一般に、ＩＣチップにとって熱は大敵であり、内部温度が最大許容接合温度を超えないようにしなければならない。また、パワートランジスタや半導体整流素子等の半導体装置では、動作面積当たりの消費電力が大きいため、半導体装置のケース（パッケージ）やリードから放出される熱量だけでは、発生熱量を放出しきれず、装置の内部温度が上昇して熱破壊を引き起こすおそれがある。

- 15 この現象は、ＣＰＵを搭載したＩＣチップにおいても同じであり、クロック周波数の向上に伴って動作時の発熱量が多くなり、放熱を考慮した熱設計が重要な事項となってきている。

- 前記熱破壊の防止等を考慮した熱設計においては、ＩＣチップのケース（パッケージ）に放熱面積の大きいヒートシンクを固着することを加味した素子設計や
20 実装設計が行われている。

前記ヒートシンク用の材料としては、一般に、熱伝導度の良好な銅やアルミニウム等の金属材料が使用されている。

- 近時、ＣＰＵやメモリ等のＩＣチップにおいては、低消費電力を目的とした低電力駆動を図りながらも、素子の高集積化と素子形成面積の拡大化に伴ってＩＣ
25 チップ自体が大型化する傾向にある。ＩＣチップが大型化すると、半導体基体（シリコン基板やＧａＡｓ基板）とヒートシンクとの熱膨張の差によって生じる応力が大きくなり、ＩＣチップの剥離現象や機械的破壊が生じるおそれがある。

これを防止するためには、ＩＣチップの低電力駆動の実現とヒートシンク材の

-2-

改善が挙げられる。ICチップの低電力駆動は、現在、電源電圧として、従来から用いられてきたTTLレベル（5V）を脱して、3.3V以下のレベルが実用化されている。

- 一方、ヒートシンクの構成材料としては、単に熱伝導度を考えるのみでなく、
- 5 半導体基体であるシリコンやGaAsと熱膨張率がほぼ一致し、しかも、熱伝導度の高い材料の選定が必要となってきた。

- ヒートシンク材の改善に関しては、多種多様の報告があり、例えば窒化アルミニウム（AlN）を使用した例や、Cu（銅）-W（タングステン）を用いた例などがある。AlNは、熱伝導性と熱膨張性のバランスに優れており、特にSi
- 10 の熱膨張率とほぼ一致することから、半導体基体としてシリコン基板を用いた半導体装置のヒートシンク材として好適である。

また、Cu-Wは、Wの低熱膨張性とCuの高熱伝導性を兼ね備えた複合材料であり、しかも、機械加工が容易であることから、複雑な形状を有するヒートシンクの構成材料として好適である。

- 15 また、他の例としては、SiCを主成分とするセラミック基材に金属Cuを20～40vol%の割合で含有させたもの（従来例1：特開平8-279569号公報参照）や、無機物質からなる粉末焼結多孔質体にCuを5～30wt%含浸させたもの（従来例2：特開昭59-228742号公報参照）などが提案されている。

- 20 前記従来例1に係るヒートシンク材は、SiCと金属Cuの圧粉体を成形してヒートシンクを作製するという粉体成形であるため、熱膨張率と熱伝導率はあくまでも理論的な値であり、実際の電子部品等で求められる熱膨張率と熱伝導率のバランスを得ることができないという問題がある。

- 従来例2は、無機物質からなる粉末焼結多孔質体に含浸されるCuの比率が低
- 25 く、熱伝導度を高める上で限界が生じるおそれがある。

一方、カーボンと金属を組み合わせた複合材料が開発され、実用化されているが、この複合材料は、金属をCuとした場合は、例えば放電加工用の電極として使用され、金属をPbとした場合は、例えば軸受部材として使用されており、ヒ

ートシンク材として用途例が知られていない。

即ち、カーボンと金属を組み合わせた複合材料において、熱伝導率の高いものでも 140 W/mK であり、ICチップのヒートシンク材として必要な 160 W/mK 以上を満足させることができないのが現状である。

5

発明の開示

本発明はこのような課題を考慮してなされたものであり、実際の電子部品（半導体装置を含む）等で求められる熱膨張率と熱伝導率とのバランスに適合した特性を得ることができるヒートシンク材を提供することを目的とする。

- 10 また、本発明の他の目的は、実際の電子部品（半導体装置を含む）等で求められる熱膨張率と熱伝導率とのバランスに適合した特性を有するヒートシンク材を容易に製造することができ、高品質のヒートシンクの生産性を向上させることができるヒートシンク材の製造方法を提供することにある。

- 15 本発明に係るヒートシンク材は、カーボン又はその同素体と、金属とを含み、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が 160 W/mK 以上であることを特徴とする。これにより、セラミック基板や半導体基板（シリコン、GaAs）等と熱膨張率がほぼ一致し、熱伝導性のよいヒートシンク材を得ることができる。

- 20 また、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が 180 W/mK 以上であって、かつ、熱膨張率が $1 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材も得ることができる。

前記同素体としては、グラファイトやダイヤモンドが好ましい。また、カーボン又はその同素体として、熱伝導率が 100 W/mK 以上のものを使用することが好ましい。

- 25 そして、ヒートシンク材は、前記カーボン又はその同素体を焼成してネットワーク化することによって得られる多孔質焼結体に前記金属を含浸することにより構成することができる。

この場合、前記多孔質焼結体の気孔率が $10\text{ vol}\% \sim 50\text{ vol}\%$ であって、

平均気孔径が $0.1\mu\text{m}\sim 200\mu\text{m}$ であることが好ましく、前記カーボン又はその同素体と前記金属との体積率は、前記カーボン又はその同素体が $50\text{vol}\%$ ～ $80\text{vol}\%$ 、金属が $50\text{vol}\%$ ～ $20\text{vol}\%$ の範囲であることが好ましい。

- 5 また、前記カーボン又はその同素体に、該カーボン又はその同素体を焼成した際の閉気孔率を低減させる添加物を添加させることが好ましい。この添加物としては、SiC及び／又はSiを挙げることができる。

- ヒートシンク材は、前記カーボン又はその同素体の粉体に、水又は結合材を混合し、所定圧力下で成形された予備成形体に、前記金属が含浸されて構成されてい
10 てもよい。この場合、粉体の平均粉末粒度が $1\mu\text{m}\sim 2000\mu\text{m}$ であり、前記粉体が最小の長さをとる方向と、最大の長さをとる方向で、その長さの比が $1:5$ 以下であることが好ましい。この場合、強いネットワークはないものの、任意の形状を作ることができる。

- また、前記カーボン又はその同素体と前記金属との体積率が、前記カーボン又はその同素体が $20\text{vol}\%$ ～ $80\text{vol}\%$ 、金属が $80\text{vol}\%$ ～ $20\text{vol}\%$ の範囲であることが好ましい。
15

また、ヒートシンク材は、前記金属が溶解した液体状態又は固液共存状態に、前記カーボン又はその同素体の粉体を混合し、鑄造成形されて構成されていてもよい。

- 20 なお、作製されたヒートシンク材の閉気孔率は $12\text{vol}\%$ 以下であることが好ましい。

- 前記金属に、界面の濡れ性改善のための元素が添加されていることが好ましい。この添加元素としては、Te、Bi、Pb、Sn、Se、Li、Sb、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上を採用することができる。特に、Niは、
25 カーボンを溶解しやすく含浸しやすいという効果がある。

前記金属に、前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための元素を添加することが好ましい。この添加元素としては、Nb、Cr、Zr、Be、Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を採用することができる。

前記金属に、湯流れ性を向上させるため、固相／液相の温度範囲が30℃以上、望ましくは50℃以上の元素を添加することが好ましい。これにより、含浸の際のばらつきを低減することができるとともに、残留気孔が減少し強度の向上を図ることができる。なお、含浸圧力を上昇させても同様の効果を得ることができる。

- 5 この添加元素としては、Sn、P、Si、Mgから選択された1種以上を採用することができる。また、前記金属に、前記融点を低減させるための元素を添加することが好ましい。この添加元素としては、例えばZnなどがある。

- 前記金属に、熱伝導率を向上させるための元素が添加されていることが好ましい。この場合、前記金属に、前記熱伝導率を向上させるための元素を添加し、熱
- 10 処理、加工及びカーボンとの反応後、偏析等によって得られる合金の熱伝導率が10W/mK以上であるとよい。望ましくは20W/mK以上、さらに望ましくは40W/mK以上、最も望ましくは60W/mK以上であることが好ましい。

- 熱処理による効果は、添加元素の時効や焼鈍、加工の組合わせにより熱伝導率が向上することが知られており、この効果を利用したものである。また、カーボンとの反応により銅、アルミ、銀中の添加元素は減少し、熱伝導率が向上すること
- 15 とも知られている。さらに、含浸金属が凝固する際に偏析等により添加元素が表面などに析出し、全体での熱伝導率が向上することも知られているので、これらの効果も利用することができる。

- 前記ヒートシンク材は、前記カーボン又はその同素体の粉体と前記金属の粉体とを混合し、所定圧力下で成形することでも構成することができる。この場合、
- 20 前記カーボン又はその同素体の粉体と前記金属の粉体の平均粉末粒度が1μm～500μmであることが好ましい。

- 前記ヒートシンク材は、前記カーボン又はその同素体の粉碎裁断材と前記金属の粉体とを混合し、所定温度、所定圧力下で成形することでも構成することが
- 25 できる。

そして、上述のように成形によってヒートシンク材を構成する場合においては、前記カーボン又はその同素体と前記金属との体積率が、前記カーボン又はその同素体が20vol%～60vol%の範囲、金属が80vol%～40vol%

の範囲であることが好ましい。これにより、熱伝導率が 200 W/mK 以上であって、かつ、熱膨張率が $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 14 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材を得ることができる。

- 5 この場合、前記カーボン又はその同素体に、成形後の再焼成を可能とする添加物を添加させることが好ましい。この添加物としては、SiC及び／又はSiを挙げることができる。

前記金属に、界面の濡れ性改善のための低融点金属が添加されていることが好ましい。この低融点金属としては、Te、Bi、Pb、Sn、Se、Li、Sb、Se、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上を採用することができる。

- 10 前記金属に、前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための元素が添加されていることが好ましい。この添加元素としては、Nb、Cr、Zr、Be、Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を採用することができる。

- 15 前記金属に、湯流れ性を向上させるため、固相／液相の温度範囲が 30°C 以上の元素、望ましくは 50°C 以上の元素を添加することが好ましい。これにより、含浸の際のばらつきを低減することができるとともに、残留気孔が減少し強度の向上を図ることができる。なお、含浸圧力を上昇させても同様の効果を得ることができる。この添加元素としては、Sn、P、Si、Mgから選択された1種以上を採用することができる。また、前記金属に、前記融点を低減させるための元素を添加することが好ましい。この添加元素としては、例えばZnなどがある。

そして、少なくとも前記カーボン又はその同素体と添加元素との反応によって、前記カーボン又はその同素体の表面にカーバイド層が形成されていてもよい。この場合、前記添加元素としては、Ti、W、Mo、Nb、Cr、Zr、Be、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を採用することができる。

- 25 また、前記カーボン又はその同素体と組み合わせられる前記金属としては、導電率の高い金属であるCu、Al、Agから選択された少なくとも1種を採用することができる。

また、本発明は、最小の熱伝導率をとる方向と、最大の熱伝導率をとる方向で、

熱伝導率の比が1：5以下である。これにより、熱伝導率がほとんど等方性に近い特性を有するため、熱の拡散が良好でありヒートシンクとして使用する場合に好適である。また、設置方向をいちいち考慮する必要がなく、実装面で有利となる。

- 5 次に、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体を焼成してネットワーク化することによって多孔質焼結体を作製する焼成工程と、金属を前記多孔質焼結体中に含浸させる含浸工程と、少なくとも前記金属が含浸された前記多孔質焼結体を冷却する冷却工程とを有することを特徴とする。

- これにより、セラミック基板や半導体基板（シリコン、GaAs）等と熱膨張率がほぼ一致し、熱伝導性のよいヒートシンク材を容易に製造することができ、
10 高品質のヒートシンクの生産性を向上させることができる。

そして、前記焼成工程は、容器内に前記カーボン又はその同素体を入れ、該容器内を加熱することにより、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体を作製するようにしてもよい。

- 15 また、前記含浸工程は、容器内に入れられた前記金属の溶湯に前記多孔質焼結体を浸漬し、前記容器内に含浸用ガスを導入して前記容器内を加圧することにより、前記溶湯を多孔質焼結体中に含浸させるようにしてもよい。この場合、前記加圧力としては、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体の圧縮強度の4～5倍以下であること、あるいは1.01～202MPa（10～2000気
20 圧）であることが好ましい。この場合の冷却工程として、前記容器内の前記含浸用ガスを抜き、速やかに冷却用ガスを導入して前記容器内を冷却するようにしてもよい。

- 他の製造方法としては、次の方法が挙げられる。即ち、前記焼成工程として、ケース内に前記カーボン又はその同素体を収容する工程と、前記ケース内を予熱
25 して、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体を作製する工程とを有し、前記含浸工程として、プレス機の金型に前記ケースを収容する工程と、前記ケース内に前記金属の溶湯を注湯する工程と、前記プレス機のパンチで前記溶湯を押し下げ圧入して前記ケース内の前記多孔質焼結体中に前記溶湯を含浸させる工程

とを有することである。

- この場合、前記パンチによる圧入時の圧力を、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体の圧縮強度の4～5倍以下であること、あるいは1.01～202MPa（10～2000気圧）とすることが好ましい。また、前記金型として、前記多孔質焼結体に残存するガスを抜くためのガス抜き孔、又は、ガスを抜くための隙間部が形成された金型を用いることが好ましい。

また、前記冷却工程は、前記多孔質焼結体に前記金属が含浸された前記ヒートシンク材を、冷却ガスの吹き付けもしくは冷却水が供給されている冷却ゾーン又は冷却用金型で冷却するようにしてもよい。

- 10 本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体の粉体に、水又は結合材を混合する工程と、前記混合物を所定圧力下で予備成形体を成形する工程と、金属を前記予備成形体中に含浸させる含浸工程とを有することを特徴とする。

- また、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、金属が溶解した液体状態又は固液共存状態に、カーボン又はその同素体の粉体を混合する工程と、前記混合物を鑄造成形する工程とを有することを特徴とする。

- また、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体の粉体と金属の粉体とを混合する混合工程と、前記混合物をホットプレス機の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とする。

- 20 また、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体の粉体と金属の粉体とを混合する混合工程と、前記混合物を予備成形して予備成形体とする予備成形工程と、前記予備成形体をホットプレス機の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とする。

25 また、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体の粉碎裁断材料と金属の粉体とを混合し、予備成形して混合物を作製する混合工程と、前記混合物をホットプレス機の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形

してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とする。

- また、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体の粉砕裁断材料と金属の粉体とを混合する混合工程と、前記混合物を予備成形して予備成形体とする予備成形工程と、前記予備成形体をホットプレス機の金型内に
- 5 入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とする。

これらの製造方法において、前記所定温度は、前記金属における融点の -10°C ～ -50°C が好ましく、前記所定圧力は、 $10.13\sim 101.32\text{MPa}$ ($100\sim 1000$ 気圧)が好ましい。

- 10 また、これらの製造方法において、加圧工程後に、前記ヒートシンク材を前記金属における融点以上まで加熱するようにしてもよい。

さらに、前記金属は、Cu、Al、Agから選択された少なくとも1種であってもよい。

15 図面の簡単な説明

図1は、第1の実施の形態に係るヒートシンク材の構成を示す斜視図である。

図2Aは、第1の製造方法で使用される高圧容器の正面を一部破断して示す図である。

図2Bは、前記高圧容器の側面を一部破断して示す図である。

- 20 図3は、第1の製造方法を示す工程ブロック図である。

図4は、第1の製造方法の第1の変形例を示す工程ブロック図である。

図5は、第1の製造方法の第2の変形例を示す工程ブロック図である。

図6は、第2の製造方法で使用される炉を示す構成図である。

図7は、第2の製造方法で使用されるプレス機を示す構成図である。

- 25 図8は、第2の製造方法を示す工程ブロック図である。

図9は、第2の実施の形態に係るヒートシンク材の構成を示す斜視図である。

図10は、第3の製造方法で使用される予備成形機を示す構成図である。

図11は、第3の製造方法で使用されるホットプレス機を示す構成図である。

- 図 1 2 は、第 3 の製造方法を示す工程ブロック図である。
- 図 1 3 は、第 4 の製造方法を示す工程ブロック図である。
- 図 1 4 は、第 4 の製造方法で使用するホットプレス機を示す構成図である。
- 図 1 5 は、第 3 の実施の形態に係るヒートシンク材の構成を示す斜視図である。
- 5 図 1 6 は、第 5 の製造方法を示す工程ブロック図である。
- 図 1 7 は、第 5 の製造方法に係るヒートシンク材の特性を示す図表である。
- 図 1 8 は、第 6 の製造方法を示す工程ブロック図である。
- 図 1 9 は、カーボン P における実験例の結果を示す図表である。
- 図 2 0 は、カーボン M における実験例の結果を示す図表である。
- 10 図 2 1 は、カーボン N における実験例の結果を示す図表である。
- 図 2 2 は、カーボン P、M、N の特性を示す図表である。
- 図 2 3 は、実験結果のうち、金型プレスによる場合とガス加圧による場合の各代表例を抽出して示す図表である。
- 図 2 4 は、含浸圧力に対する気孔率及び密度の変化を示す特性図である。
- 15 図 2 5 は、各ロットの測定密度と密度平均との関係を示す特性図である。
- 図 2 6 は、含浸圧力に対する熱伝導率の変化を示す特性図である。
- 図 2 7 は、含浸圧力に対する圧縮強度の変化を示す特性図である。
- 図 2 8 は、含浸圧力に対する密度の変化を示す特性図である。
- 図 2 9 は、含浸圧力に対する熱伝導率の変化を示す特性図である。
- 20 図 3 0 は、SiC の気孔率、気孔径、Ni めっきの有無、Si 含浸の有無、含浸温度、加圧力、加圧時間、冷却速度を適宜変えたときの SiC / Cu の反応状況と Cu の含浸状況の違いを示す表図である。
- 図 3 1 は、含浸圧力に対する残留気孔の変化を示す特性図である。
- 図 3 2 は、添加元素に対する残留気孔の変化を示す特性図である。
- 25 図 3 3 は、第 7 の製造方法に使用されるホットプレス機を示す概略構成図である。
- 図 3 4 は、第 7 の製造方法を示す工程ブロック図である。
- 図 3 5 A は、パッキン部材を示す平面図である。

図35Bは、図35AにおけるXXIVB-XXIVB線上の断面図である。

図36は、第7の製造方法に使用されるホットプレス機の他の例を示す概略構成図である。

図37は、第7の製造方法の変形例に使用されるホットプレス機を示す概略構成図である。

図38は、第7の製造方法の変形例を示す工程ブロック図である。

図39は、第8の製造方法に使用されるホットプレス機を示す概略構成図である。

図40は、第8の製造方法を示す工程ブロック図である。

10

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係るヒートシンク材及びその製造方法の実施の形態例を図1～図40を参照しながら説明する。

第1の実施の形態に係るヒートシンク材10Aは、図1に示すように、カーボン又はその同素体を焼成してネットワーク化することによって得られる多孔質焼結体12に金属14が含浸されて構成されている。

この場合、前記カーボン又はその同素体として、熱伝導率が 100 W/mK 以上、望ましくは 150 W/mK 以上（気孔がない状態での推定値）、さらに望ましくは 200 W/mK 以上（気孔がない状態での推定値）のものを使用することが好ましい。

本例では、熱伝導率が 100 W/mK 以上のグラファイトで構成された多孔質焼結体12の開気孔部に銅を含浸させたヒートシンク材を示す。含浸する金属14としては、銅のほかに、アルミニウムや銀を使用することができる。

また、多孔質焼結体12と金属14との体積率は、多孔質焼結体12が $50\text{ vol}\% \sim 80\text{ vol}\%$ 、金属14が $50\text{ vol}\% \sim 20\text{ vol}\%$ の範囲としている。これにより、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が $180 \sim 220\text{ W/mK}$ 以上であって、かつ、熱膨張率が $1 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材を得ることができる。

25

前記多孔質焼結体12の気孔率としては、10 vol %～50 vol %であることが望ましい。気孔率が10 vol %以下では、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の180 W/mK（室温）の熱伝導率を得ることができず、50 vol %を超えると多孔質焼結体12の強度が低下し、熱膨張率を $15.0 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下に抑えることができないからである。

前記多孔質焼結体12の平均開気孔径（気孔径）の値としては、0.1～200 μm が望ましい。前記気孔径が0.1 μm 未満であると、開気孔内に金属14を含浸することが困難になり、熱伝導率が低下する。一方、前記気孔径が200 μm を超えると、多孔質焼結体12の強度が低下し、熱膨張率を低く抑えることができない。

前記多孔質焼結体12の平均開気孔に関する分布（気孔分布）としては、0.5～50 μm に90 vol %以上分布することが好ましい。0.5～50 μm の気孔が90 vol %以上分布していない場合は、金属14が含浸していない開気孔が増え、熱伝導率が低下する可能性がある。

また、多孔質焼結体12に金属14を含浸して得たヒートシンク材10Aの閉気孔率としては、12 vol %以下であることが好ましい。5 vol %を超えると、熱伝導率が低下する可能性があるからである。

なお、前記気孔率、気孔径及び気孔分布の測定には、株式会社島津製作所製の自動ポロシメータ（商品名「オートポア9200」）を使用した。

この第1の実施の形態に係るヒートシンク材10Aにおいて、前記グラファイトに、該グラファイトを焼成した際の閉気孔率を低減させる添加物を添加させることが好ましい。この添加物としては、SiC及び／又はSiを挙げることができる。これにより、焼成時の閉気孔（クローズドポア）を減少させることができ、多孔質焼結体12に対する金属14の含浸率を向上させることができる。

また、グラファイト中に、該グラファイトと反応する元素を添加するようにしてもよい。この添加元素としては、Ti、W、Mo、Nb、Cr、Zr、Be、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を挙げることができる。これにより、グラファイトの焼成時に、該グラファイトの表面（開気孔の表面を含む）に反応

層（カーバイド層）が形成され、グラファイトの開気孔に含浸される金属14との濡れ性が改善し、低圧での含浸が可能になり、しかも、微細開気孔への含浸も可能になる。

一方、多孔質焼結体12に含浸される金属14に、Te、Bi、Pb、Sn、
5 Se、Li、Sb、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上を添加することが好ましい。これにより、多孔質焼結体12と金属14との界面の濡れ性が改善され、多孔質焼結体12の開気孔内に金属14が入り易くなる。特に、Niは、カーボンを溶解しやすく含浸しやすいという効果がある。

また、多孔質焼結体12に含浸される金属14に、Nb、Cr、Zr、Be、
10 Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を添加することが好ましい。これにより、グラファイトと金属との反応性が向上し、開気孔内においてグラファイトと金属とが密着し易くなり、閉気孔の発生を抑制することができる。

また、多孔質焼結体12に含浸される金属14に、湯流れ性を向上させるとともに残留気孔が減少するため、固相／液相の温度範囲が30℃以上、望ましくは
15 50℃以上の元素、例えばSn、P、Si、Mgから選択された1種以上を添加することが好ましい。これにより、含浸の際のばらつきを低減することができるとともに、残留気孔が減少し強度の向上を図ることができる。なお、含浸圧力を上昇させても同様の効果を得ることができる。また、前記金属14に、融点を低減させるための元素を添加することが好ましい。この添加元素としては、例えば
20 Znなどがある。

次に、この第1の実施の形態に係るヒートシンク材10Aを製造するためのいくつかの方法を図2A～図8を参照しながら説明する。

第1の実施の形態に係るヒートシンク材10Aを製造するための第1及び第2の製造方法は共に、グラファイトを焼成してネットワーク化することによって多
25 孔質焼結体12を作製する焼成工程と、金属14を前記多孔質焼結体12中に含浸させる含浸工程とを有する。

そして、第1の製造方法は、具体的には図2A及び図2Bにその一例を示すように、高圧容器30を使用することによって行われる。この高圧容器30は、角

筒状の筐体 3 2 における両側板 3 4 及び 3 6 のほぼ中央部分にそれぞれ回転軸 3 8 が設けられて、該回転軸 3 8 を中心として筐体 3 2 自体が回転できるようになっている。

5 筐体 3 2 内には、耐火容器 4 0 と該耐火容器 4 0 を加熱するためのヒータ 4 2 が設けられている。耐火容器 4 0 は、中空部 4 4 を有する角筒状の形状を有し、1 つの側面における高さ方向中央部分に中空部 4 4 に連通する開口 4 6 が設けられている。中空部 4 4 のうち、開口 4 6 を中心として一方の中空部（以下、第 1 室 4 4 a と記す）には、含浸材料である金属 1 4 の塊、あるいは金属 1 4 の熔融金属が収容されるようになっている。

10 他方の中空部（以下、第 2 室 4 4 b と記す）は、被含浸試料である多孔質焼結体 1 2 が複数取り付けられるようになっており、第 2 室 4 4 b が上方に位置しても、多孔質焼結体 1 2 が落下しないように多孔質焼結体 1 2 の支持機構が設けられている。なお、ヒータ 4 2 は、3 0 0 M P a の高圧力下でも破壊されない構造とされている。

15 また、前記高圧容器 3 0 には、真空引きのための吸気管 4 8 と、高圧力付与のためのガス及び冷却用ガスの導入管 5 0 及び導出管 5 2 が設けられている。

次に、前記高圧容器 3 0 を用いた第 1 の製造方法について図 3 を参照しながら説明する。

まず、ステップ S 1 において、グラファイトを棒状に成形する工程、ピッチ
20 （コールタール的一种）を含浸させる工程及び加熱焼成する工程を経てグラファイトによる多孔質焼結体 1 2 を作製する。

グラファイトを棒状に成形するには、グラファイト粉体にピッチを混合して、1 5 0 ° C 程度の雰囲気中で押しだし成形を行って棒状（φ 1 0 0 ~ φ 6 0 0 、長さ 3 0 0 0 m m 程度）のグラファイトを得る。このままの状態のグラファイトは、
25 気孔が多くしかも熱伝導率が低い。

次に、グラファイトの気孔を減少させるために真空脱気を行い、その真空中でピッチを含浸させる。そして、1 0 0 0 ° C 程度で焼成しさらにピッチを含浸する工程を 3 回程度繰り返す。

- そして、熱伝導率を向上させるために3000℃程度の炉の中でグラファイトを加熱焼成する。このとき、グラファイトが燃焼することを防止するために炉をカーボン粉末でカバーするとともに、グラファイト自身もカーボン粉末でカバーしておく。また、このグラファイトを加熱する工程は、グラファイトに直接通電
- 5 することにより加熱焼成してもよい。

このようにすることで、多孔質焼結体12が得られるが、最終製品の形状によってはさらに予備加工をしておくことが望ましい。

その後、ステップS2において、高压容器30を初期状態にして、高压容器30内に設けられている耐火容器40の第1室44aを下方に位置させる。

- 10 その後、多孔質焼結体12と金属14の塊を高压容器30の耐火容器40内に入れ、金属14の塊を耐火容器40の第1室44a内に配置し、多孔質焼結体12を第2室44bにセットする（ステップS3）。このとき予め多孔質焼結体12を予熱しておくことが好ましい。予熱を行うには、多孔質焼結体12をカーボンケースに収納するか又は断熱材にて覆った状態で予熱を行い、所定の温度に達
- 15 したらケースに収納するか又は断熱材にて覆った状態のままで上記のとおり第2室44bにセットする。

その後、高压容器30（及び耐火容器40）を密封した後、吸気管48を通じて高压容器30内の真空引きを行って該高压容器30内を負圧状態にする（ステップS4）。

- 20 その後、ヒータ42に通電して第1室44aの金属14を加熱溶解する（ステップS5）。以下の説明では、加熱溶解された金属14を便宜的に「熔融金属14」とも記す。

- その後、第1室44a内の熔融金属14が所定温度に達した段階で、高压容器30を180度転回させる（ステップS6）。この転回動作によって、第1室44aが上方に位置することから、第1室44a内の熔融金属14は、自重によって下方に位置する第2室44b内に落下し、この段階で、熔融金属14に多孔質焼結体12が浸された状態となる。
- 25

その後、ガス導入管50を通じて高压容器30内に含浸用ガスを導入して、該

高压容器 30 内を加圧する（ステップ S 7）。この加圧処理によって、前記熔融金属 14 は多孔質焼結体 12 の開気孔部中に含浸することとなる。

- この含浸工程が終了した時点で直ちに冷却工程に移行する。この冷却工程は、まず、前記高压容器 30 を再び 180 度転回させる（ステップ S 8）。この転回
- 5 動作によって、第 1 室 44 a が下方に位置することから、第 2 室 44 b 内の熔融金属 14 は、再び第 1 室 44 a 内に落下することになる。

- 前記ステップ S 7 での加圧処理（含浸処理）によって、熔融金属 14 の一部が多孔質焼結体 12 の開気孔中に含浸されていることから、下方に位置する第 1 室 44 a に落下する熔融金属 14 は多孔質焼結体 12 に含浸されなかった残存熔融
- 10 金属である。残存熔融金属が第 1 室 44 a 内に落下した段階で、第 2 室 44 b には熔融金属 14 が含浸された多孔質焼結体 12 が残ることとなる。

- その後、ガス導出管 52 を通じて高压容器 30 内の含浸用ガスを排気すると同時に、ガス導入管 50 を通じて冷却用ガスを高压容器 30 内に導入する（ステップ S 9）。この含浸用ガスの排気と冷却用ガスの導入によって、冷却用ガスが高
- 15 压容器 30 内を満遍なく循環し、高压容器 30 は急速に冷却される。この速やかなる冷却によって、前記多孔質焼結体 12 に含浸された熔融金属 14 が、急速に金属 14 の塊に固化して体積が膨張することから、含浸された金属 14 は多孔質焼結体 12 に強固に保持される。

- 他の冷却工程としては、図 3 において一点鎖線の枠内に示すように、前記ステップ S 8 での処理が終了した段階で、高压容器 30、あるいは熔融金属 14 が含浸された多孔質焼結体 12 を冷却ゾーンに搬送し、冷却ゾーンに設置されている冷やし金に接触させる方法がある（ステップ S 10 参照）。
- 20

- この冷やし金への接触によって多孔質焼結体 12 は急速に冷却されることとなる。この冷却過程においては、多孔質焼結体 12 に冷却ガスを吹き付けたり、冷
- 25 やし金を水冷しながら行うようにしてもよく、特に、押湯効果を考慮して冷却した方が好ましい。

このように、第 1 の製造方法の各工程を踏むことにより、グラファイトによる多孔質焼結体 12 への金属 14 の含浸処理を容易に行うことができ、しかも、多

孔質焼結体12への金属14の含浸率を向上させることができ、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が $180 \sim 220 \text{ W/mK}$ 以上であって、かつ、熱膨張率が $1 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C} \sim 10 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ であるヒートシンク材10Aを容易に得ることができる。

- 5 ただし、後述する多孔質焼結体にSiCを採用する場合は、室温から 200°C までの平均熱膨張率が $4.0 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C} \sim 9.0 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ で、かつ直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が 160 W/mK （室温）以上、好ましくは 180 W/mK 以上であるヒートシンク材を得ることができる。

- 前記ステップS5において、ヒータ42に通電して第1室44aの金属14を
10 加熱溶解する場合に、ステップS6に移行する所定温度（加熱温度）は、金属14の融点より $30^\circ\text{C} \sim 250^\circ\text{C}$ 高い温度がよく、好ましくは前記融点より $50^\circ\text{C} \sim 200^\circ\text{C}$ 高い温度が望ましい。この場合、高圧容器30内を $1 \times 10^{-3} \text{ Torr}$ 以下の真空中にしておくことが好ましい。

- また、前記ステップS7において、高圧容器30内に含浸用ガスを導入することによって高圧容器30に付与する圧力としては、
15 0.98 MPa 以上、 202 MPa 以下とする。この場合、 4.9 MPa 以上、 202 MPa 以下が好ましく、より好ましくは 9.8 MPa 以上、 202 MPa 以下であるとよい。

- この圧力は、高圧である方が含浸率の向上、冷却能力の向上の観点から好ましい。しかし、圧力が高すぎるとグラファイトの破損を生じやすくなり、また、高
20 圧に耐えうる設備のコストが高くなるので、これらの要素を勘案して圧力を選択する。

また、高圧容器30への圧力の付与時間は1秒以上、60秒以下がよく、望ましくは1秒以上、30秒以下が好ましい。

- なお、多孔質焼結体20の気孔としては、上述したように、平均直径が
25 $0.5 \mu\text{m} \sim 50 \mu\text{m}$ のものが90vol%以上存在し、かつ、気孔率が10vol% $\sim 50 \text{ vol}\%$ であることが望ましい。

ただし、後述する多孔質焼結体にSiCを採用する場合は、平均直径が $5 \mu\text{m} \sim 50 \mu\text{m}$ のものが90%以上存在し、かつ、気孔率が20vol% $\sim 70 \text{ vol}\%$

1 %であることが望ましい。

一方、冷却工程における冷却速度は、含浸時の温度から800℃までの期間において、-400℃/時間以上とすることが好ましく、より好ましくは-800℃/時間以上が望ましい。

- 5 前記ステップS7において、高压容器30に付与する圧力は、多孔質焼結体12の開気孔部に金属14を完全に含浸させるために必要な圧力である。この場合、多孔質焼結体12に金属14が含浸されていない開気孔が残存すると、熱伝導性を著しく阻害するため、高い圧力を付与することが必要となる。

- 10 この圧力はその概略をワッシュバーン (Washburn) の式によって推定できるが、気孔径が小さいほど大きな力を必要とする。この式に従えば、0.1 $\mu\text{m}\phi$ のとき39.2 MPa、1.0 $\mu\text{m}\phi$ のとき3.92 MPa、10 $\mu\text{m}\phi$ のとき0.392 MPaの圧力が適当である。しかしながら、実際は平均気孔径が0.1 $\mu\text{m}\phi$ の材料は0.01 $\mu\text{m}\phi$ 以下の気孔も存在する (図31及び図32参照) ためにより大きい圧力が必要になる。具体的には0.01 $\mu\text{m}\phi$ には392
15 MPaが必要である。

なお、グラファイトへの添加元素や金属への添加元素の好ましい例については、すでに述べたのでここではその説明を省略する。

次に、第1の製造方法のいくつかの変形例を図4及び図5を参照しながら説明する。

- 20 第1の変形例は、図4に示すように、まず、グラファイトを焼成して、グラファイトによる多孔質焼結体12を作製する (ステップS101)。高压容器30を初期状態にして、高压容器30内に設けられている耐火容器40の第1室44aを下方に位置させる (ステップS102)。

- 25 その後、多孔質焼結体12を第2室44bにセットし、予め溶融された金属 (溶融金属) 14を第1室44a内に流し込む (ステップS103)。

その後、第1室44a内の溶融金属14が所定温度に達した段階で、高压容器30を180度転回させる (ステップS104)。この転回動作によって、第1室44a内の溶融金属14が下方に位置する第2室44bに落下し、この段階で、

溶融金属 1 4 に多孔質焼結体 1 2 が含浸された状態となる。

その後、ガス導入管 5 0 を通じて高圧容器 3 0 内に含浸用ガスを導入して、該高圧容器 3 0 内を加圧する（ステップ S 1 0 5）。この加圧処理によって、前記溶融金属 1 4 は多孔質焼結体 1 2 の開気孔部中に含浸することとなる。

- 5 次に、第 2 の変形例について図 5 を参照しながら説明する。この第 2 の変形例に係る含浸工程は、高圧容器 3 0 内に設置されている耐火容器 4 0 の内部中央部分に、多孔質セラミック材からなる仕切板（図示せず）が設けられた高圧容器 3 0 を用いる。耐火容器 4 0 内は、前記仕切板によって第 1 室 4 4 a と第 2 室 4 4 b とに仕切られることになる。

- 10 前記仕切板としては、気孔率が 4 0 v o l % ~ 9 0 v o l % で、かつ気孔径が 0 . 5 mm ~ 3 . 0 mm である多孔質セラミック材を用いることが望ましく、より好ましくは気孔率が 7 0 v o l % ~ 8 5 v o l % であり、かつ気孔径が 1 . 0 mm ~ 2 . 0 mm である多孔質セラミック材を用いることが望ましい。

- 15 そして、この第 2 の変形例では、図 5 に示すように、まず、グラファイトを焼成して、グラファイトによる多孔質焼結体 1 2 を作製する（ステップ S 2 0 1）。高圧容器 3 0 を初期状態にして、高圧容器 3 0 内に設けられている耐火容器 4 0 の第 1 室 4 4 a を下方に、第 2 室 4 4 b を上方に位置させる（ステップ S 2 0 2）。

- 20 その後、多孔質焼結体 1 2 と金属 1 4 の塊を高圧容器 3 0 の耐火容器 4 0 内に入れ、金属 1 4 の塊を上方に位置する第 2 室 4 4 b 内に配置し、多孔質焼結体 1 2 を下方に位置する第 1 室 4 4 a にセットする（ステップ S 2 0 3）。

その後、高圧容器 3 0 （及び耐火容器 4 0 ）を密封した後、吸気管 4 8 を通じて高圧容器 3 0 内の真空引きを行って該高圧容器 3 0 内を負圧状態にする（ステップ S 2 0 4）。

- 25 その後、ヒータ 4 2 に通電して第 2 室 4 4 b の金属 1 4 を加熱溶解する（ステップ S 2 0 5）。前記溶融金属 1 4 が所定温度に達した段階で、ガス導入管 5 0 を通じて高圧容器 3 0 内に含浸用ガスを導入して、該高圧容器 3 0 内を加圧する（ステップ S 2 0 6）。この加圧処理によって、上方に位置する第 2 室 4 4 b 内

の熔融金属14は、仕切板を通過し、下方に位置する第1室44a内の多孔質焼結体12の開気孔部中に含浸されることになる。

次に、第2の製造方法について図6～図8を参照しながら説明する。この第2の製造方法では、図6に示すように、グラファイトを焼成して多孔質焼結体12
5 を作製するための炉60と、図7に示すように、多孔質焼結体12に金属14を
含浸させるためのプレス機62が使用される。

炉60は、図6に示すように、一般にはグラファイトを黒鉛化するために用い
られるものであり、その内部にケース70が収容可能な空間72と、該空間72
内に収容されたケース70を加熱するためのヒータ74が設けられている。ケー
10 ス70はグラファイト、セラミックス、セラペーパー（アルミナ等のセラミックス
から構成される断熱材）等の材料から構成される。そして、このケース70には、
グラファイトが収容される。

プレス機62は、図7に示すように、上部開口の凹部80を有する金型82と、
凹部80内に挿通可能とされ、かつ、凹部80内の内容物を押し下げ圧入するパ
15 ンチ84とを有する。

次に、前記炉60とプレス機62を用いた第2の製造方法について図8を参照
しながら説明する。

まず、ケース70内にグラファイトを入れ、該ケース70を炉60内に収容す
る（ステップS301）。炉60内の雰囲気を加熱して、グラファイトを焼成し
20 多孔質焼結体12を作製する（ステップS302）。

また、この工程においては、グラファイトに対して電流を通電することにより
3000℃程度まで加熱して、多孔質焼結体12を作製するようにしてもよい。

その後、炉60から多孔質焼結体12をケース70ごと取り出して、プレス機
62の凹部80内に多孔質焼結体12をケース70ごと収容する（ステップS3
25 03）。

次に、ケース70内に金属14の溶湯86を注湯した後（ステップS304）、
パンチ84を凹部80内に挿通し、ケース70内の前記溶湯86を押し下げ圧入
する（ステップS305）。このパンチ84の押圧処理によって、金属14の溶

湯 8 6 は、多孔質焼結体 1 2 の開気孔部中に含浸することとなる。

上述の第 2 の製造方法において、前記パンチ 8 4 による圧入時の圧力を 1. 0
1 ~ 2 0 2 M P a (1 0 ~ 2 0 0 0 気圧) とすることが好ましい。また、図 7 に
示すように、ケース 7 0 の底部や金型 8 2 の底部に、多孔質焼結体 1 2 に残存す
5 るガスを抜くためのガス抜き孔 8 8 及び 9 0 やガスを抜くための隙間部を形成す
るようにしてもよい。この場合、パンチ 8 4 の圧入時に、多孔質焼結体 1 2 に残
存するガスがガス抜き孔 8 8 及び 9 0 を通して抜けるため、開気孔への溶湯 8 6
の含浸がスムーズに行われることになる。

このように、第 2 の製造方法の各工程を踏むことにより、グラファイトによる
10 多孔質焼結体 1 2 への金属 1 4 の含浸処理を容易に行うことができ、しかも、多
孔質焼結体 1 2 への金属 1 4 の含浸率を向上させることができ、直交する 3 軸方
向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が 1 8 0 ~ 2 2 0 W / m K 以上であっ
て、かつ、熱膨張率が $1 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C} \sim 10 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ であるヒートシンク
材 1 0 A を容易に得ることができる。

15 上述の炉 6 0 の代わりに、予熱を利用する炉を使用してもよい。この場合、予
め圧粉した材料またはグラファイトによる多孔質焼結体 1 2 を予熱する。この処
理によってネットワーク化しているグラファイト（又は後述の S i C）に対して
金属 1 4 が含浸しやすくなる。予熱の温度は、溶湯 8 6 と同程度の温度まで予熱
することが望ましい。具体的には、溶湯 8 6 が 1 2 0 0 ° C 程度であるならば、グ
20 ラファイトの予熱温度は 1 0 0 0 ° C ~ 1 4 0 0 ° C が望ましい。

次に、第 2 の実施の形態に係るヒートシンク材 1 0 B について図 9 を参照しな
がら説明する。

第 2 の実施の形態に係るヒートシンク材 1 0 B は、図 9 に示すように、カーボ
ン又はその同素体の粉体 1 2 a と金属 1 4 の粉体 1 4 a とを混合し、所定温度、
25 所定圧力下で成形されて構成されている。

前記カーボン又はその同素体としては、熱伝導率が 1 0 0 W / m K 以上、望ま
しくは 1 5 0 W / m K 以上（気孔がない状態での推定値）、さらに望ましくは 2
0 0 W / m K 以上（気孔がない状態での推定値）のものを使用することが好まし

い。特に、この第2の実施の形態では、グラファイトのほかに、ダイヤモンドを使用することができる。本例では、熱伝導率が 100 W/mK 以上のグラファイトの粉体と銅の粉体を混合し、成形して構成されたヒートシンク材10Bを示す。前記金属14としては、銅のほかに、アルミニウムや銀を使用することができる。

- 5 また、この第2の実施の形態に係るヒートシンク材10Bは、前記カーボン又はその同素体の粉碎裁断材（例えば炭素繊維の粉碎裁断材）と前記金属14の粉体14aとを混合し、所定温度、所定圧力下で成形して構成することもできる。

そして、前記所定温度としては、プレス型内での成形を考慮すると、前記金属14における融点の $-10^{\circ}\text{C} \sim -50^{\circ}\text{C}$ が好ましく、前記所定圧力としては、
10 $0.13 \sim 101.32\text{ MPa}$ （ $100 \sim 1000$ 気圧）が好ましい。

また、前記カーボン又はその同素体の粉体12aと、金属14の粉体14aの平均粉末粒度は、 $1\text{ }\mu\text{m} \sim 500\text{ }\mu\text{m}$ であることが好ましい。カーボン又はその同素体と金属14との体積率は、カーボン又はその同素体が $20\text{ vol}\% \sim 60\text{ vol}\%$ 、金属14が $80\text{ vol}\% \sim 40\text{ vol}\%$ の範囲としている。これにより、
15 直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が $200 \sim 350\text{ W/mK}$ 以上であって、かつ、熱膨張率が $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 14 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材10Bを得ることができる。

この第2の実施の形態に係るヒートシンク材10Bにおいて、カーボン又はその同素体に、成形後の再焼成を可能とする添加物を添加させることが好ましい。

- 20 この添加物としては、SiC及び/又はSiを挙げることができる。これにより、成形後において、前記金属14の融点以上の温度での再焼成が可能となる。この場合、成形後に生じた粒同士が前記再焼成によって結合することになるため、熱伝導を阻害する粒界をほとんどなくすることができ、ヒートシンク材10Bの熱伝導率の向上を図ることができる。

- 25 また、カーボン又はその同素体中に、該カーボン又はその同素体と反応する元素を添加するようにしてもよい。この添加元素としては、Ti、W、Mo、Nb、Cr、Zr、Be、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を挙げることができる。これにより、成形時や再焼成時に、カーボン又はその同素体の表面に反

応層（カーバイド層）が形成され、ヒートシンク材10Bの表面における粒同士
の結合を向上させることができる。

一方、前記金属14には、低融点金属、例えばTe、Bi、Pb、Sn、Se、
Li、Sb、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上を添加することが
5 好ましい。これにより、カーボン又はその同素体と金属14との界面の濡れ性が
改善され、熱伝導を阻害する粒界の発生を抑えることができる。なお、熱伝導の
観点から、前記低融点金属は前記金属14に固溶しないことが好ましい。

また、前記金属14に、Nb、Cr、Zr、Be、Ti、Ta、V、B、Mn
から選択された1種以上を添加することが好ましい。これにより、カーボン又は
10 その同素体と金属14との反応性が向上し、この場合も、成形時における粒界の
発生を抑えることができる。

また、前記金属14に、湯流れ性を向上させるとともに残留気孔を減少させる
ため、固相／液相の温度範囲が30℃以上、望ましくは50℃以上の元素、例え
ばSn、P、Si、Mgから選択された1種以上を添加することが好ましい。こ
15 れにより、含浸の際のばらつきを低減することができるとともに、残留気孔が減
少し強度の向上を図ることができる。なお、含浸圧力を上昇させても同様の効果
を得ることができる。

また、前記金属14に、融点を低減させるための元素を添加することが好まし
い。この添加元素としては、例えばZnなどがある。

20 次に、この第2の実施の形態に係るヒートシンク材10Bを製造するためのい
くつかの方法（第3及び第4の製造方法）を図10～図14を参照しながら説明
する。

まず、第3の製造方法は、具体的には図10及び図11にその一例を示すよう
に、予備成形機100（図10参照）と、ホットプレス機102（図11参照）
25 を使用することによって行われる。

予備成形機100は、図10に示すように、上部開口の凹部110を有する金
型112と、凹部110内に挿通可能とされ、かつ、凹部110内の内容物を押
し下げ圧入するパンチ114とを有する。ケース70には、カーボン又はその同

素体の粉体 12 a と金属 14 の粉体 14 a とを混合したもの、即ち、混合物 104 が収容される。

5 ホットプレス機 102 は、図 11 に示すように、筒状の筐体 120 内に、基台を兼ねる下パンチ 122 と、該下パンチ 122 上に固定された上面開口の黒鉛製の耐火容器 124 と、該耐火容器 124 内に上方から進退自在とされた上パンチ 126 と、前記耐火容器 124 を加熱するためのヒータ 128 が設けられている。耐火容器 124 には、前記予備成形機 100 で成形された混合物 104 の予備成形体 106 が収容される。なお、このホットプレス機 102 には、真空引きのための吸気管 130 が設けられている。

10 下パンチ 122 の内部には、耐火容器 124 内を加熱するための加熱用流体や耐火容器 124 内を冷却するための冷却用流体を流通させる通路 132 が設けられている。

そして、第 3 の製造方法は、図 12 に示す工程を踏むことにより行われる。まず、ケース 70 内にカーボン又はその同素体の粉体 12 a と金属 14 の粉体 14 a とを入れて混合して混合物 104 を得た後（ステップ S401）、該混合物 104 が入ったケース 70 を予備成形機 100 における金型 112 の凹部 110 内に収容する（ステップ S402）。その後、パンチ 114 を凹部 110 内に圧入して混合物 104 を予備成形して予備成形体 106 を成形する（ステップ S403）。

20 次に、金型 112 から予備成形体 106 を取り出して、該予備成形体 106 をホットプレス機 102 における耐火容器 124 内に収容する（ステップ S404）。耐火容器 124 を密封した後、吸気管 130 を通じて耐火容器 124 内の真空引きを行って該耐火容器 124 内を負圧状態にする（ステップ S405）。その後、ヒータ 128 に通電して、耐火容器 124 内の温度を金属 14 の融点の
25 $-10^{\circ}\text{C} \sim -50^{\circ}\text{C}$ にする（ステップ S406）。

所定温度に達した段階で、上パンチ 126 を下方に移動させて、予備成形体 106 を加圧してヒートシンク材 10B を得る（ステップ S407）。その後、加工工程等を経ることによって実際のヒートシンク材 10B として使用される。但

し、カーボン又はその同素体と金属14との結合力を高める元素が添加されている場合には、前記加圧後に、金属14の融点以上まで加熱してもよい。

なお、カーボン又はその同素体への添加元素や金属14への添加元素の好ましい例については、すでに述べたのでここではその詳細な説明を省略する。

- 5 このように、第3の製造方法の各工程を踏むことにより、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が200～350W/mK以上であって、かつ、熱膨張率が $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 14 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材10Bを容易に得ることができる。

- 次に、第4の製造方法について図13及び図14を参照しながら説明する。この第4の製造方法では、図14に示すように、予備成形機100は使用せずに、
10 ホットプレス機102のみを使用することによって行われる。

- 即ち、図13に示すように、まず、ケース70内にカーボン又はその同素体の粉体12aと金属14の粉体14aとを入れて混合して混合物104を得た後（ステップS501）、ケース70内の混合物104を直接ホットプレス機10
15 2における耐火容器124内に収容する（ステップS502）。耐火容器124を密封した後、吸気管130を通じて耐火容器124内の真空引きを行って該耐火容器124内を負圧状態にする（ステップS503）。その後、ヒータ128に通電して、耐火容器124内の温度を金属14の融点の $-10^{\circ}\text{C} \sim -50^{\circ}\text{C}$ にする（ステップS504）。

- 20 所定温度に達した段階で、上パンチ126を下方に移動させて、混合物104を加圧してヒートシンク材10Bを得る（ステップS505）。

- この第4の製造方法においても、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が200～350W/mK以上であって、かつ、熱膨張率が $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 14 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材10Bを容易に得ることが
25 できる。

次に、第3の実施の形態に係るヒートシンク材10Cについて図15を参照しながら説明する。

第3の実施の形態に係るヒートシンク材10Cは、図15に示すように、カー

- ボン又はその同素体の粉体 1 2 b とバインダー（結合体）等とを混合した混合物を加圧して予備成形体及びブロック（立方体、直方体、又は任意形状であってもよい）を成形し、さらに、このブロックに金属を含浸させて構成している。粉体 1 2 b は、第 2 の実施の形態で用いたカーボン又はその同素体の粉体 1 2 a と同じのものでよい。このヒートシンク材 1 0 C は、最終形状に近い任意の形状に作ることができる。

前記カーボン又はその同素体としては、グラファイトのほかに、ダイヤモンドを使用することができる。また、金属 1 4 としては、銅のほかに、アルミニウムや銀を使用することができる。

- 10 また、前記カーボン又はその同素体の粉体 1 2 b の平均粉末粒度は、 $1\ \mu\text{m}$ ～ $2000\ \mu\text{m}$ であり、前記粉体 1 2 b が最小の長さをとる方向と、最大の長さをとる方向で、その長さの比が 1 : 5 以下であることが好ましい。この場合、強いネットワークはないものの、最終形状に近い任意の形状に作ることができる。従って、後工程の加工を省略することも可能である。そして、カーボン又はその同素体の粉体 1 2 b と金属 1 4 との体積率は、カーボン又はその同素体が 20 vol %～80 vol %、金属 1 4 が 80 vol %～20 vol % の範囲が望ましい。

また、カーボン又はその同素体の粉体 1 2 b 中に、該カーボン又はその同素体と反応するための添加元素を添加することが望ましい。この添加元素は第 2 の実施の形態と同様に選択すればよい。

- 20 前記金属 1 4 には、第 1 の実施の形態の場合と同様に各添加元素を用いることが望ましい。つまり、濡れ性改善のための添加元素、カーボン又はその同素体と金属 1 4 との反応性を向上させるための添加元素、湯流れ性を向上させるための添加元素、融点を低減させるための添加元素などである。

- 次に、第 3 の実施の形態の第 5 の製造方法について図 1 6 を参照しながら説明する。この第 5 の製造方法では、まず、カーボン又はその同素体の粉体 1 2 b に水、バインダー（結合材）を混合させて混合物を用意する（ステップ S 6 0 1）。そして、その混合物を所定圧力で加圧して予備成形体を成形する（ステップ S 6 0 2）。加圧装置としてはプレス機 6 2（図 7 参照）又は予備成形機 1 0 0

(図10参照)を用いるとよい。

次に、得られた予備成形体に熔融金属14を含浸しやすくするために予熱処理を行う(ステップS603)。この予熱温度は、例えば、熔融金属14が1200℃程度であるならば、グラファイトの予熱温度は1000℃~1400℃が望ましい。この予熱処理を行うことで、ステップS601において用いたバインダーを除去することもできる。

さらに、ステップS604において、予備成形体を焼成してブロックを成形する。焼成する方法は第1の実施の形態と同様に行う。

そして、予備成形体に熔融金属14を含浸させる(ステップS605)。この含浸工程は、第1の実施の形態で示した各含浸工程と同じ処理を行えばよい。例えば、高圧容器30(図2参照)を使用して、第1の製造方法(図3参照)におけるステップS2からステップS9の工程を行うことでヒートシンク材10Cを得ることができる。

この第5の製造方法によれば、ステップS602で行う加圧処理において、粉体の圧粉状況により熱膨張率と熱伝導率を所望の値に制御することができる。

また、得られたヒートシンク材10Cは、熱伝導率がより等方性になり、濡れ性、材料歩留まりも向上するという特徴を持つ。

さらに、金属14の方がネットワークになるので強度を上げることができ、残留気孔も減少させることができる。

またさらに、ヒートシンク材10Cを廉価に製造することができる。すなわち、含浸前のブロックは脆いためにそのままでは加工できない。しかし、粉末予備成形品は、そのものの形状に成形しておいてから含浸することができ、かつ、その後多少の塑性変形にも耐えうるため、複雑形状のヒートシンク材10Cを廉価に得ることができる。

この第5の製造方法においても、前述の各製造方法の場合と同様に、含浸させる金属14に炭化物を形成する元素を添加することで熱膨張を下げることもできる。また、濡れ性等の改良元素を添加することにより含浸率を向上させることができる。

また、高い含浸圧力を付与した場合の方が、含浸率が上がり、強度、熱伝導率も向上する。

ここで、第5の製造方法による含浸実施例を図17に示す。図17の充填方法の欄で「無加圧」と表示されているものは、上記加圧工程ステップS602を省略して粉体を敷き詰めた混合物にそのまま金属14を含浸させたことを示している。また、「加圧」と表示されているものは、粉体 1000 cm^3 に水ガラス 10 cm^3 と水 100 cm^3 を添加して圧粉し、その後予熱時（ 1200°C ）に水と水ガラスを除去させて成形したものである。

次に、第3の実施の形態に係るヒートシンク材10の第6の製造方法について図18を参照しながら説明する。この第6の製造方法では、まず、金属を溶解した熔融金属14又は固液共存状態の金属（固液共存金属）を用意する（ステップS701）。ここで、固液共存状態とは金属（一般には合金）を半融状態にしたもの、又は金属溶湯を冷却、攪拌して半凝固状態にしたものをいい、金属を加熱し直接的に半融状態にしたものと、一度完全に溶解した後に冷却して半凝固状態にしたものの両方を指す。

次に、カーボン又はその同素体の粉体12aを前記熔融金属14または固液共存状態の金属に混合させる（ステップS702）。

そして、この粉体12aを混合させた熔融金属14または固液共存金属を鋳造加工し、所望の形状に成形することでヒートシンク材10Cを得ることができる（ステップS703）。

第6の製造方法において得られたヒートシンク材10Cは、第5の製造方法により作製したものと同様の特徴を有する。

次に、1つの実験例（第1の実験例）を示す。この第1の実験例は、3種類のカーボン（P、M、N）について、含浸する金属14の種類、添加元素の種類、含浸方法を変えて、2方向の熱伝導率の違い、2方向の熱膨張率の違い、2方向の曲げ強度の違い、耐水性、添加元素の効果をそれぞれ見たものである。この実験例の結果を図19～図21に示す。また、3種類のカーボン（P、M、N）の各特性を図22に示す。

なお、耐水性は、デシケータ内に少量の水とサンプルを入れ、サンプルを水に浸さずに水の雰囲気曝した状態にして検査した。

まず、含浸方法として金型プレスを用いた場合について見てみると、熱伝導率については、添加元素を含んだ銅合金を含浸させたものの方が純銅を含浸させたものよりも全体に高くなっている。本来、純銅の方が熱伝導率が高いが、カーボンとの濡れ性が悪く、含浸しにくいこと、含浸後のカーボンと金属の界面で熱伝導率が低下することなどが原因と考えられる。

また、純アルミを含浸させたものは、カーバイドを生成する効果とカーボンに対する濡れ性が高いため、純銅を含浸させた場合よりも熱伝導率の高いものが得られるが、添加元素を含む銅合金を含浸させたものの方が熱伝導率が高くなっている。

しかし、含浸方法としてガス加圧を用いた場合は、金型プレスによる場合よりも熱伝導率が高くなっており、ガス加圧によって純銅を含浸させたものの熱伝導率は、添加元素を含んだ銅合金を含浸させたものとほぼ同じになっている。図23に、図19～図21に示す実験結果のうち、金型プレスによる場合とガス加圧による場合の各代表例を抽出して示す。

これは、ガス加圧の方が予熱温度及び溶湯温度の制御がやりやすいためである。もちろん、金型プレスにおいても、設備上の工夫をすることで同レベルの含浸特性（熱伝導率が高くなる）を得ることができる。

熱膨張率については、すべてのカーボンにおいて、純銅を含浸させたもの、銅合金を含浸させたもの、純アルミを含浸させたもので違いはなく、含浸方法によっても違いはなかった。

また、濡れ性を向上させる添加元素を含む銅合金を含浸させたものは、耐水性が良好であり、カーバイドの生成が容易になる添加元素を含む銅合金を含浸させたものは、カーボンのみよりも曲げ強度が向上していることがわかる。

また、これら各サンプルは、面方向と厚さ方向の熱伝導率の比が1：5以下となっており、ほとんど等方性に近い特性を有するため、ヒートシンクとして使用する場合に、設置方向をいちいち考慮する必要がなく、実装面で有利となる。

さらに、2つの実験例（第2及び第3の実験例）を示す。これらの実験例は、第1の実施の形態における、カーボンに金属を含浸させる含浸工程で、容器内を含浸加圧する際を含浸圧力を変えて、残留気孔、密度、均質化、圧縮強度、及び直交する2つの面方向における熱伝導率の違いをそれぞれ見たものである。

- 5 第2の実験例は、含浸圧力を26.7 MPa (272 kgf/cm²)、及び156.0 MPa (1592 kgf/cm²)で行った。この実験例の結果を図2.4に示す。

図2.4は、縦軸に気孔率(□で示す)、及び密度(○で示す)をとって、横軸に含浸圧力を取り、プロットしたものである。気孔率のプロットを□で示し、密度のプロットを○で示す。この実験結果から高い含浸圧力を付与した場合の方が、
10 密度は大きくなり、しかも気孔率は減少していることがわかる。

また、カーボンの圧縮強度（規格：JIS R 1608 ファインセラミックスの圧縮強さ試験方法）は面方向で24.5～34.3 MPa (250～35 kgf/cm²)、厚さ方向で34.3～44.1 MPa (350～450 kg
15 f/cm²)なので、この実験から、上記含浸工程ではカーボンの圧縮強度の4～5倍の含浸圧力を付与した場合でも製造上問題のないことが確認できた。

第3の実験例は、含浸圧力を26.7 MPa (272 kgf/cm²)、及び60.0 MPa (612 kgf/cm²)で行った。この実験例の結果を図2.5～図2.9に示す。

- 20 図2.5は縦軸に測定密度をとって、横軸に各ロットの密度平均を取りプロットしたものである。

この図2.5から、含浸圧力を高くした方がロットごとの密度平均のばらつきが小さいことが分かる。

図2.6～図2.8は、横軸に含浸圧力をとって、縦軸にはそれぞれ、厚さ方向の
25 熱伝導率、圧縮強度、及び密度をとってプロットしたものである。これらの図2.6～図2.8から、高い含浸圧力を付与した場合の方が、各特性とも値が向上していることがわかる。

図2.9は、直交する2つの面方向での熱伝導率の違いをプロットしたものであ

る。一方をX方向として横軸にとり、もう一方をY方向として縦軸にとった。この図29から、高い含浸圧力を付与した場合の方が、面方向でのばらつきが少ないことがわかる。

前記第2及び第3の実験例では、含浸圧力を高くしたことで、金属14の含浸
5 量が増えたことにより、各効果を奏したものと考えられる。

さらに、別の2つの実験例（第4及び第5の実験例）を示す。この第4及び第5の実験例は、第4の実施の形態において、カーボンに金属14を含浸させる含浸工程で、含浸加圧する際の含浸圧力と、金属14に添加する元素とを変えて、残留気孔の変化をそれぞれ見たものである。

10 第4の実験例は、含浸金属にCu0.1Nbを採用し、含浸圧力を加えない元素材と、27MPa、48MPa、及び60MPaを加圧した場合で行った。この実験例の結果を図31に示す。

図31は横軸に気孔径、縦軸に残留気孔容積をとり、各含浸圧力の場合における違いを見たものである。この図31から、含浸圧力を上げることで含浸後の残留
15 気孔率が減少していることが分かる。

第5の実験例は、含浸させる金属に元素を添加しない元素材と、Cu5Siを添加した場合及びCu0.1Nbを添加した場合であり、含浸圧力については27MPaの場合と43MPaの場合で実験した。この実験例の結果を図32に示す。

20 図32における元素材は、図31における元素材と同条件であるので、それぞれの波形はほぼ同じ形状になっている。

添加した元素のCu5Siは、固相／液相温度範囲が30℃以上あるので、Cu0.1Nbに比べて湯流れ性（濡れ性）がよい。その結果、Cu5Siを添加したもののほうが残留気孔が減少していることが分かる。また、含浸圧力を上げた
25 方が含浸後の残留気孔が減少する傾向がみられるが、これは図31と同じ傾向といえる。また、残留気孔が減少することにより強度の向上を図ることができる。

次に、カーボン又はその同素体に代えて、SiCを多孔質焼結体として利用する場合について説明する。

SiCに濡れ性改善のための添加剤を入れるには、金属の成分に5%までの範囲で、Be、Al、Si、Mg、Ti、Niから選択された1種以上の添加元素を含むことが好ましい。これらの元素は、カーボンを多孔質焼結体として利用した場合とは異なるので注意する。

5 そして、SiCと金属14との濡れ性の向上を図って、SiCに予め1~10 vol%, 望ましくは3~5 vol%のNiめっきを施すことが好ましい。この場合、低圧力での含浸を実現させることができる。ここでいう、Niめっきとしては、予熱時に熔融しないめっき処理が望ましく、例えばNi-P-WのめっきやNi-B-Wのめっき等が含まれる。

10 また、SiCと金属14との濡れ性の向上を図って、SiCに予めSiを1~10 vol%, 望ましくは3~5 vol%含浸させることが好ましい。この場合も低圧力での含浸を実現させることができる。

15 そして、前記SiCに予め1~10 vol%のNiめっきを施す、あるいは、予めSiを1~10 vol%含浸させることに関連して、SiCに予めパラジウムめっきを施すようにしてもよい。この場合、前記パラジウムめっきに加えて、NiやSiとの複合めっきを施すことも可能である。

20 また、SiCと金属14は高温において反応が生じ、該SiCがSiとCに分解されて本来の機能が発揮されなくなる。このため、SiCと金属14とが高温で直接接触する時間を短縮することが必要である。第1の処理条件（高圧容器30に付与する圧力=0.98 MPa (10 kgf/cm²) 以上、98 MPa (1000 kgf/cm²) 以下)、第2の処理条件（加熱温度=金属14の融点より30℃~250℃高い温度）又は第3の処理条件（SiCに予め1~10 vol%のNiめっきを施す）を満足させることにより、SiCと金属14との接触時間を短くすることができるため、前記のようなSiCの分解反応を事前に
25 回避することができる。

また、SiCと金属14とは濡れ性が悪いことから、金属14を十分に含浸させるには高圧力をかけることが必要である。第3の処理条件（SiCに予め1~10 vol%のNiめっきを施す）、又は第4の処理条件（SiCに予めSiを

1~10 vol%含浸させる)を行うことによりSiCの気孔表面が改質され、SiCと金属14との濡れ性が良好となるため、より低圧力でより細かい気孔にまで金属14を含浸させることができる。

- ここで、さらに別の実験例(第6の実験例)を示す。この第6の実験例は、SiCの気孔率、気孔径、Niめっきの有無、Si含浸の有無、含浸温度、加圧力、加圧時間、冷却速度を適宜変えて、そのときのSiC/Cuの反応状況とCuの含浸状況の違いをみたものである。その実験結果を図30の表図に示す。この図30において、SiC/Cuの反応状況は、SiCとCuとの間に形成された反応層の厚み(平均値)によって決定させた。その決定条件は、以下の通りである。
- 10 また、この決定条件の根拠は、SiCとCuとの間に5 μ m以上の反応層が生じると、SiCとCu間の熱伝達が悪化し、半導体ヒートシンク用複合材料とした場合の熱伝導率が低下するからである。

- ・ 反応層の厚み(平均)が1 μ m以下 → 「反応無し」
- ・ 反応層の厚み(平均)が1 μ mを超え5 μ m以下 → 「反応少」
- 15 ・ 反応層の厚み(平均)が5 μ mを超える → 「反応大」

この実験結果から、SiCの気孔率、気孔径、含浸温度、加圧力、加圧時間及び冷却速度についてそれぞれ所定範囲を満足するもの(サンプル3、7、8、11及び12)については、いずれもSiC/Cuの反応状況が「反応無し」で、かつCuの含浸状況が良好となっており、良好な結果が得られている。

- 20 これらサンプルのうち、サンプル3、7、11及び12については、NiめっきあるいはSi含浸を行っているため、Cuとの濡れ性が良好となり、加圧時間を短くしても前記のように良好な結果が得られた。また、サンプル8については、Niめっき及びSi含浸を行っていないが、加圧力を高くしたことによって、加圧時間を短くすることが可能となり、前記のように良好な結果が得られた。

- 25 一方、加圧力が前記所定範囲よりも低い0.78 MPa (8 kgf/cm²)であるサンプル1、5及び9については、Cuの含浸状況がいずれも不十分となっており、これらサンプルのうち、加圧時間が長いものについては(サンプル1及び5)、SiC/Cuの反応状況が「反応大」となっている。

- なお、サンプル6について、SiC/Cuの反応状況が「反応少」にも拘わらず含浸状況が不十分となっているのは、気孔率及び気孔径がそれぞれ所定範囲を満たしていないからと考えられ、サンプル14について、含浸状況が良好であるにも拘わらずSiC/Cuの反応状況が「反応大」となっているのは、気孔径が
- 5 所定範囲よりも大きく、加圧時間が比較的長いからと考えられる。

- 次に、多孔質焼結体にSiCを利用した実施の形態について説明する。まず、前記第1の実施の形態（第1の製造方法、第1の変形例、第2の変形例、及び第2の製造方法）において、SiCを利用する場合は、グラファイトを焼成して多孔質焼結体を作製する工程（ステップS1、ステップS101、ステップS20
- 10 1、ステップS301、及びステップS302）は不要であり、その後のステップでは同じ工程で製造することができる。

さらに、多孔質焼結体にSiCを利用した実施の形態として、第4の実施の形態に係る製造方法（第7の製造方法）について、図33～図36を参照しながら説明する。

- 15 この第7の製造方法は、具体的には図33にその一例を示すように、ホットプレス機1060を使用することによって行われる。このホットプレス機1060は、前記第2の実施の形態で説明したホットプレス機102とほぼ同じ構造であるが、便宜上、図を分けて説明する。

- このホットプレス機1060は、筒状の筐体1062内に、基台を兼ねる下パンチ1064と、該下パンチ1064上に固定された上面開口の耐火容器106
- 20 6と、該耐火容器1066内に上方から進退自在とされた上パンチ1068と、前記耐火容器1066を加熱するためのヒータ1070が設けられている。なお、このホットプレス機1060には、真空引きのための吸気管1072が設けられている。

- 25 前記耐火容器1066は、中空部1074を有する筒状の形状を有する。上パンチ1068は、その側面に、該上パンチ1068の行程（ストローク）を決定するフランジ部1076が設けられ、該フランジ部1076の下面には、前記耐火容器1066の上周面と接触して耐火容器1066を密閉状態にするためのパ

ッキン1078が取り付けられている。一方、下パンチ1064の内部には、耐火容器1066内を加熱するための加熱用流体や耐火容器1066内を冷却するための冷却用流体を流通させる通路1080が設けられている。

そして、第7の製造方法は、図34に示す工程を踏むことにより行われる。

- 5 まず、耐火容器1066の中空部1074内に、下からSiC1020、多孔質セラミック製のフィルタ1054、金属14の塊の順で投入する（ステップS1301）。フィルタ1054としては、気孔率が40%～90%で、かつ気孔径が0.5mm～3.0mmである多孔質セラミック材を用いることが望ましく、
10 mである多孔質セラミック材を用いることが望ましい。

- また、前記フィルタ1054は、SiC1020と金属14の塊とを仕切って両者を非接触状態におく仕切板としての機能を果たし、中空部1074のうち、フィルタ1054上の金属14の塊がセットされた部分を上室1074a、フィルタ1054下のSiC1020がセットされた部分を下室1074bとして定義
15 することができる。

次に、耐火容器1066を密封した後、吸気管1072を通じて耐火容器1066内の真空引きを行って該耐火容器1066の両室1074a及び1074b内を負圧状態にする（ステップS1302）。

- その後、ヒータ1070に通電して上室1074a内の金属14を加熱溶解する（ステップS1303）。このとき、前記ヒータ1070への通電と併せて下
20 パンチ1064の通路1080内に加熱用流体を流して耐火容器1066の内部を加熱するようにしてもよい。

- 上室1074a内の金属14の溶解物（熔融金属）が所定温度に達した段階で、上パンチ1068を下方に移動させて上室1074a内を所定圧まで加圧する
25 （ステップS1304）。このとき、上パンチ1068のフランジ部1076に取り付けられたパッキン1078と耐火容器1066の上周面との接触及び互いの押圧により、耐火容器1066が密封され、内部の熔融金属が耐火容器1066の外に漏れるという不都合が有効に防止される。

所定圧になった上室1074a内の金属14の溶解物(熔融金属)は上室1074a内の圧力によってフィルタ1054を通して下室1074b側に押し出されて該下室1074b内に導入されると同時に、該下室1074b内に設置されたSiC1020に含浸される。

- 5 時間管理によって予め設定されている終点(SiC1020内への熔融金属14の含浸が飽和状態とされた時点)となった段階において、今度は、下パンチ1064内の通路1080に冷却用流体を流して耐火容器1066を下方から上方に向かって冷却させることにより(ステップS1305)、SiC1020に含浸された熔融金属14を凝固させる。凝固が完了するまで上パンチ1068と下
10 パンチ1064による耐火容器1066内の加圧状態は保持される。

凝固が完了した時点で、金属14が含浸されたSiC1020を耐火容器1066から取り出す(ステップS1306)。

- この製造方法においては、SiC1020と金属14とを十分に脱気しつつ加熱し、金属14を熔融した後、速やかにSiC1020に接触させ、かつ、これ
15 らを加圧状態とし、さらにその加圧状態を冷却操作完了時まで保持するようにしたので、SiC1020に金属14を効率的に含浸することができる。前記例では含浸処理を負圧下で行うようにしたが、常圧下で行ってもよい。

- このように、熔融金属14とSiC1020を共に加圧下においた後に、互いに接触させて、含浸処理を行うようにしたので、両者を接触させる際の圧力低下
20 を最小限にすることができ、含浸処理時における加圧状態を良好に保持させることができる。

- 前記例では、熔融金属14の漏れを防止するために、上パンチ1068におけるフランジ部1076の下面にパッキン1078を設けるようにしたが、図33の二点鎖線で示すように、耐火容器1066の上周面にパッキン1078を設けるようにしてもよい。また、図35Aに示すように、リング状の割型パッキン1
25 100を2枚重ねにしたパッキン部材1102を、図36に示すように、上パンチ1068の下部に設けるようにしてもよい。この場合、パッキン部材1102の中空部1104に熔融金属が入り込むことにより各割型パッキン1100の直

径が拡大し、結果的に上室1074aが密封されて熔融金属14の漏れが防止されることになる。

次に、第7の製造方法の変形例について図37及び図38を参照しながら説明する。なお、図33と対応する構成要素については同符号を付してその重複説明を省略する。

5 この変形例に係る製造方法においては、ホットプレス機1060として、図37に示すように、耐火容器1066における中空部1074の高さ方向中央部に多孔質セラミックスにて構成されたフィルタ部材1110が固着され、下室1074bの側面に扉1112が開閉自在に取り付けられたものが使用される。従って、耐火容器1066の中空部1074のうち、フィルタ部材1110よりも上の部分が上室1074aとなり、フィルタ部材1110よりも下の部分が下室1074bとなる。特に、下室1074bに取り付けられた扉1112に関しては、該扉1112を閉じたときに下室1074bが密封されるような構造が採用される。

15 そして、この変形例に係る製造方法は、図38に示す工程を踏むことにより行われる。

まず、耐火容器1066の上室1074a内に金属14の塊を投入し、下室1074bの扉1112を開いて該下室1074b内にSiC1020を投入する(ステップS1401)。

20 次に、扉1112を閉じて下室1074bを密封し、さらにホットプレス機1060を密封した後、吸気管1072を通じて耐火容器1066内の真空引きを行って該耐火容器1066の両室1074a及び1074b内を負圧状態にする(ステップS1402)。

その後、ヒータ1070に通電して上室1074a内の金属14を加熱溶解する(ステップS1403)。この場合も前記ヒータ1070への通電と併せて下パンチ1064の通路1080内に加熱用流体を流して耐火容器1066の内部を加熱するようにしてもよい。

上室1074a内の金属14の溶解物(熔融金属)が所定温度に達した段階で、

上パンチ1068を下方に移動させて上室1074a内を所定圧まで加圧する（ステップS1404）。

所定圧になった上室1074a内の金属14の溶解物（熔融金属）は上室1074a内の圧力によってフィルタ部材1110を通して下室1074b側に押し
5 出されて該下室1074b内に導入されると同時に、該下室1074b内に設置されたSiC1020に含浸される。

時間管理によって予め設定されている終点となった段階において、今度は、下
パンチ1064内の通路1080に冷却用流体を流して耐火容器1066を下方
から上方に向かって冷却させることにより（ステップS1405）、SiC10
10 20に含浸された熔融金属14を凝固させる。

凝固が完了した時点で、金属14が含浸されたSiC1020を耐火容器1066から取り出す（ステップS1406）。

この変形例に係る製造方法においても、第7の製造方法と同様に、SiC1020に金属14を効率的に含浸することができる。また、この変形例でも、熔融
15 金属14とSiC1020を共に加圧下においた後に、互いに接触させて、含浸処理を行うようにしているため、両者を接触させる際の圧力低下を最小限にすることができ、含浸処理時における加圧状態を良好に保持させることができる。なお、この変形例では、負圧下で含浸処理を行うようにしたが、常圧下で行ってもよい。

20 さらに、多孔質焼結体にSiCを利用した実施の形態として、第5の実施の形態に係る製造方法（第8の製造方法）について、図39及び図40を参照しながら説明する。なお、図33と対応する構成要素については同符号を記してその重複説明を省略する。

この第8の製造方法は、前記第4の実施の形態に係る製造方法と原理的にはほぼ同じであるが、含浸工程において、SiC1020と金属14とを負圧下又は
25 常圧下で接触させ、加熱処理して前記金属14を熔融する点で異なる。

具体的には、図33に示した第3の実施の形態に係る製造方法にて使用されるホットプレス機1060の耐火容器1066内にフィルタ1054を投入せずに、

下からSiC1020、金属14の順に投入する点で異なる。

そして、第5の実施の形態に係る製造方法は、図40に示す工程を踏むことにより行われる。

まず、耐火容器1066の中空部1074内に、下からSiC1020、金属
5 14の塊の順に投入する（ステップS1501）。

次に、ホットプレス機1060を密封した後、吸気管1072を通じて耐火容器1066内の真空引きを行って該耐火容器1066内を負圧状態にする（ステップS1502）。

その後、ヒータ1070に通電して耐火容器1066内の金属14を加熱溶解
10 する（ステップS1503）。このとき、前記ヒータ1070への通電と併せて下パンチ1064の通路1080内に加熱用流体を流して耐火容器1066の内部を加熱するようにしてもよい。

耐火容器1066内の金属14の溶解物（熔融金属）が所定温度に達した段階で、上パンチ1068を下方に移動させて耐火容器1066内を所定圧まで加圧
15 する（ステップS1504）。

所定圧になった金属14の溶解物（熔融金属）は耐火容器1066内の圧力によってSiC1020に含浸される。

時間管理によって予め設定されている終点（SiC1020内への熔融金属の含浸が飽和状態とされた時点）となった段階において、今度は、下パンチ106
20 4内の通路1080に冷却用流体を流して耐火容器1066を下方から上方に向かって冷却することにより（ステップS1505）、SiC1020に含浸された熔融金属を凝固させる。凝固が完了するまで上パンチ1068と下パンチ1064による耐火容器1066内の加圧状態は保持される。

凝固が完了した時点で、金属14が含浸されたSiC1020を耐火容器10
25 66から取り出す（ステップS1506）。

この第8の製造方法においても、SiC1020と金属14とを十分に脱気しつつ加熱し、金属14とSiC1020とを接触させた状態で金属14を熔融した後、耐火容器1066内を加圧状態とし、さらにその加圧状態を冷却操作完了

-40-

時まで保持するようにしたので、SiC10.20に金属14を効率的に含浸することができる。

なお、この発明に係るヒートシンク材及びその製造方法は、上述の実施の形態に限らず、この発明の要旨を逸脱することなく、種々の構成を採り得ることはも

5 ちろんである。

請求の範囲

1. カーボン又はその同素体と、金属(14)とを含み、
直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が160W/mK以上であることを特徴とするヒートシンク材。
5
2. 請求項1記載のヒートシンク材において、
直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が180W/mK以上であって、かつ、
10 熱膨張率が $1 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であることを特徴とするヒートシンク材。
3. 請求項1記載のヒートシンク材において、
前記同素体がグラファイトであることを特徴とするヒートシンク材。
15
4. 請求項1記載のヒートシンク材において、
前記同素体がダイヤモンドであることを特徴とするヒートシンク材。
5. 請求項1記載のヒートシンク材において、
20 前記カーボン又はその同素体として、熱伝導率が100W/mK以上のものが使用されていることを特徴とするヒートシンク材。
6. 請求項1、3又は5のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記カーボン又はその同素体を焼成してネットワーク化することによって得ら
25 れる多孔質焼結体(12)に前記金属(14)が含浸されて構成されていることを特徴とするヒートシンク材。
7. 請求項6記載のヒートシンク材において、

前記多孔質焼結体(12)の気孔率が10vol%~50vol%であって、平均気孔径が0.1 μ m~200 μ mであることを特徴とするヒートシンク材。

8. 請求項6又は7記載のヒートシンク材において、

- 5 前記カーボン又はその同素体と前記金属(14)との体積率が、前記カーボン又はその同素体が50vol%~80vol%、金属(14)が50vol%~20vol%の範囲であることを特徴とするヒートシンク材。

9. 請求項6~8のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 10 前記カーボン又はその同素体に、該カーボン又はその同素体を焼成した際の閉気孔率を低減させる添加物が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

10. 請求項9記載のヒートシンク材において、

- 15 前記閉気孔率を低減させる添加物が、SiC及び/又はSiであることを特徴とするヒートシンク材。

11. 請求項1、3又は5のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 20 前記カーボン又はその同素体の粉体(12b)に、水又は結合材を混合し、所定圧力下で成形された予備成形体に、前記金属(14)が含浸されて構成されていることを特徴とするヒートシンク材。

12. 請求項11記載のヒートシンク材において、

前記カーボン又はその同素体の粉体(12b)の平均粉末粒度が1 μ m~2000 μ mであり、

- 25 前記粉体(12b)が最小の長さをとる方向と、最大の長さをとる方向で、その長さの比が1:5以下であることを特徴とするヒートシンク材。

13. 請求項11又は12記載のヒートシンク材において、

前記カーボン又はその同素体と前記金属(14)との体積率が、前記カーボン又はその同素体が20vol%～80vol%、金属(14)が80vol%～20vol%の範囲であることを特徴とするヒートシンク材。

- 5 14. 請求項1、3又は5のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)が溶解した液体状態又は固液共存状態に、前記カーボン又はその同素体の粉体(12b)を混合し、鋳造成形されて構成されていることを特徴とするヒートシンク材。
- 10 15. 請求項6～14のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
閉気孔率が12vol%以下であることを特徴とするヒートシンク材。
- 15 16. 請求項6～15のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、界面の濡れ性改善のための元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。
- 20 17. 請求項16記載のヒートシンク材において、
前記界面の濡れ性改善のための添加元素がTe、Bi、Pb、Sn、Se、Li、Sb、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上であることを特徴とするヒートシンク材。
- 25 18. 請求項6～17のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。
19. 請求項18記載のヒートシンク材において、
前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための添加元素がNb、Cr、Zr、Be、Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上であるこ

とを特徴とするヒートシンク材。

20. 請求項6～19のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、湯流れ性を向上させるため、固相／液相の温度範囲が3
5 0℃以上の元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

21. 請求項20記載のヒートシンク材において、
前記添加元素がSn、P、Si、Mgから選択された1種以上であることを特
徴とするヒートシンク材。

10

22. 請求項6～21のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、融点を低減させるための元素が添加されていることを特徴
とするヒートシンク材。

- 15 23. 請求項22記載のヒートシンク材において、
前記添加元素がZnなどであることを特徴とするヒートシンク材。

24. 請求項6～23のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、熱伝導率を向上させるための元素が添加されていることを
20 特徴とするヒートシンク材。

25. 請求項24記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、前記熱伝導率を向上させるための元素を添加し、熱処理、
加工及びカーボンとの反応後、偏析等によって得られる合金の熱伝導率が10W
25 /mK以上であることを特徴とするヒートシンク材。

26. 請求項1～5のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記カーボン又はその同素体の粉体(12a)と前記金属(14)の粉体(14a)とを

混合し、所定圧力下で成形されて構成されていることを特徴とするヒートシンク材。

27. 請求項26記載のヒートシンク材において、

- 5 前記カーボン又はその同素体の粉体(12a)と前記金属(14)の粉体(14a)の平均粉末粒度が $1\mu\text{m}\sim 500\mu\text{m}$ であることを特徴とするヒートシンク材。

28. 請求項1～5のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 前記カーボン又はその同素体の粉碎裁断材と前記金属(14)の粉体とを混合し、
10 所定温度、所定圧力下で成形されて構成されていることを特徴とするヒートシンク材。

29. 請求項26～28のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 前記カーボン又はその同素体と前記金属(14)との体積率が、前記カーボン又はその同素体が $20\text{vol}\%\sim 60\text{vol}\%$ 、金属(14)が $80\text{vol}\%\sim 40\text{vol}\%$ の範囲であることを特徴とするヒートシンク材。
15

30. 請求項26～29のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 熱伝導率が $200\text{W}/\text{mK}$ 以上であって、かつ、熱膨張率が $8\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$
20 $\sim 14\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であることを特徴とするヒートシンク材。

31. 請求項26～30のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 前記カーボン又はその同素体に、成形後の再焼成を可能とする添加物が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。
25

32. 請求項31記載のヒートシンク材において、

- 前記成形後の再焼成を可能とする添加物が、SiC及び/又はSiであることを特徴とするヒートシンク材。

33. 請求項26～32のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、界面の濡れ性改善のための低融点金属が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

5

34. 請求項33記載のヒートシンク材において、
前記低融点金属がTe、Bi、Pb、Sn、Se、Li、Sb、Se、Tl、
Ca、Cd、Niから選択された1種以上であることを特徴とするヒートシンク材。

10

35. 請求項26～34のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

15 36. 請求項35記載のヒートシンク材において、
前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための添加元素がNb、
Cr、Zr、Be、Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上であることを特徴とするヒートシンク材。

20 37. 請求項26～36のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、湯流れ性を向上させるため、固相／液相の温度範囲が30℃以上の元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

38. 請求項37記載のヒートシンク材において、
25 前記添加元素がSn、P、Si、Mgから選択された1種以上であることを特徴とするヒートシンク材。

39. 請求項26～38のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

前記金属(14)に、融点を低減させるための元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

40. 請求項39記載のヒートシンク材において、

5 前記添加元素がZnなどであることを特徴とするヒートシンク材。

41. 請求項1～40のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

前記カーボン又はその同素体の表面に、カーバイド層が形成されていることを特徴とするヒートシンク材。

10

42. 請求項41記載のヒートシンク材において、

前記カーバイド層の形成は、少なくとも前記カーボン又はその同素体と添加元素との反応に基づくものであることを特徴とするヒートシンク材。

15 43. 請求項42記載のヒートシンク材において、

前記添加元素が、Ti、W、Mo、Nb、Cr、Zr、Be、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上であることを特徴とするヒートシンク材。

44. 請求項1～43のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

20 前記金属(14)は、Cu、Al、Agから選択された少なくとも1種であることを特徴とするヒートシンク材。

45. 請求項1～44のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

25 最小の熱伝導率をとる方向と、最大の熱伝導率をとる方向で、熱伝導率の比が1：5以下であることを特徴とするヒートシンク材。

46. カーボン又はその同素体を焼成してネットワーク化することによって多孔質焼結体(12)を作製する焼成工程と、

金属(14)を前記多孔質焼結体(12)中に含浸させる含浸工程と、
少なくとも前記金属(14)が含浸された前記多孔質焼結体(12)を冷却する冷却工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

- 5 47. 請求項46記載のヒートシンク材の製造方法において、
前記焼成工程は、容器内に前記カーボン又はその同素体を入れ、該容器内を加熱することにより、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体(12)を製作することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。
- 10 48. 請求項46又は47記載のヒートシンク材の製造方法において、
前記含浸工程は、容器内に入れられた前記金属(14)の溶湯に前記多孔質焼結体(12)を浸漬し、前記容器内に含浸用ガスを導入して前記容器内を加圧することにより、前記溶湯を多孔質焼結体(12)中に含浸させることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。
- 15
49. 請求項48記載のヒートシンク材の製造方法において、
前記加圧力が、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体(12)の圧縮強度の4～5倍以下であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。
- 20 50. 請求項49記載のヒートシンク材の製造方法において、
前記加圧力が、1.01～202MPa（10～200.0気圧）であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。
- 25 51. 請求項46～50のいずれか1項に記載のヒートシンク材の製造方法において、
前記冷却工程は、前記容器内の前記含浸用ガスを抜き、速やかに冷却用ガスを導入して前記容器内を冷却することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

5 2. 請求項 4 6 ~ 5 1 のいずれか 1 項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記焼成工程は、ケース(70)内に前記カーボン又はその同素体を収容する工程と、前記ケース(70)内を予熱して、前記カーボン又はその同素体による多孔

5 質焼結体(12)を作製する工程とを有し、

前記含浸工程は、プレス機(62)の金型(82)に前記ケース(70)を収容する工程と、前記ケース内に前記金属(14)の溶湯(86)を注湯する工程と、前記プレス機(62)のパンチ(84)で前記溶湯(86)を押し下げ圧入して前記ケース(70)内の前記多孔質焼結体(12)中に前記溶湯(86)を含浸させる工程とを有することを特

10 徴とするヒートシンク材の製造方法。

5 3. 請求項 5 2 記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記パンチ(84)による圧入時の圧力が、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体(12)の圧縮強度の 4 ~ 5 倍以下であることを特徴とするヒートシ

15 ンク材の製造方法。

5 4. 請求項 5 3 記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記パンチ(84)による圧入時の圧力が、1.01 ~ 202 MPa (10 ~ 2000 気圧)であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

20

5 5. 請求項 5 3 又は 5 4 記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記金型(82)として、前記多孔質焼結体(12)に残存するガスを抜くためのガス抜き孔、又は、ガスを抜くための隙間部が形成された金型(82)を用いることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

25

5 6. 請求項 4 6 ~ 5 5 のいずれか 1 項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記冷却工程は、前記多孔質焼結体(12)に前記金属(14)が含浸された前記ヒ

-50-

ートシンク材を、冷却ガスの吹き付けもしくは冷却水が供給されている冷却ゾーン又は冷却用金型で冷却することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

- 5 7. カーボン又はその同素体の粉体(12b)に、水又は結合材を混合する工程と、

前記混合物を所定圧力下で予備成形体を成形する工程と、

金属(14)を前記予備成形体中に含浸させる含浸工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

- 10 5 8. 金属(14)が溶解した液体状態又は固液共存状態に、カーボン又はその同素体の粉体(12a)を混合する工程と、

前記混合物を鋳造成形する工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

- 15 5 9. カーボン又はその同素体の粉体と金属(14)の粉体(14a)とを混合する混合工程と、

前記混合物(104)をホットプレス機(102)の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

20

- 6 0. カーボン又はその同素体の粉体と金属(14)の粉体(14a)とを混合する混合工程と、

前記混合物(104)を予備成形して予備成形体(106)とする予備成形工程と、

- 25 前記予備成形体(106)をホットプレス機(102)の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

- 6 1. カーボン又はその同素体の粉碎裁断材料と金属(14)の粉体(14a)とを混

合し、予備成形して混合物(104)を作製する混合工程と、

前記混合物(104)をホットプレス機(102)の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

5

6 2. カーボン又はその同素体の粉碎裁断材料と金属(14)の粉体(14a)とを混合する混合工程と、

前記混合物(104)を予備成形して予備成形体(106)とする予備成形工程と、

10 前記予備成形体(106)をホットプレス機(102)の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

6 3. 請求項5 9～6 2のいずれか1項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

15 前記所定温度が前記金属(14)における融点の -10°C ～ -50°C であり、
前記所定圧力が $10.13\sim 101.32\text{MPa}$ ($100\sim 1000$ 気圧)であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

20 6 4. 請求項5 9～6 3のいずれか1項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

加圧工程後に、前記ヒートシンク材を前記金属(14)における融点以上まで加熱することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

25 6 5. 請求項4 6～6 4のいずれか1項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記金属(14)は、Cu、Al、Agから選択された少なくとも1種であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

1/40

FIG. 1

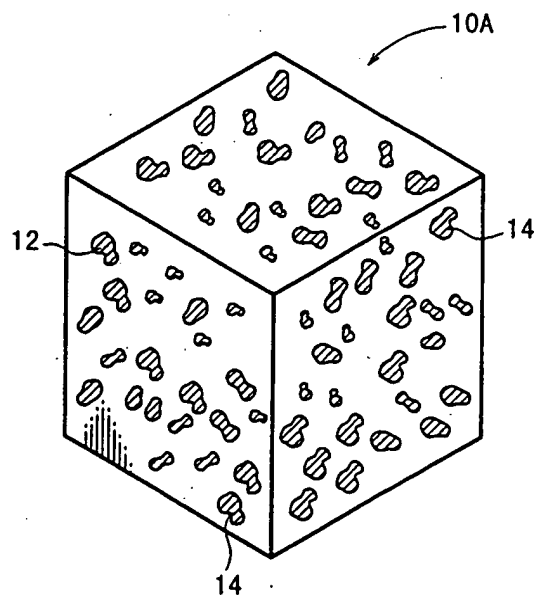


FIG. 2A

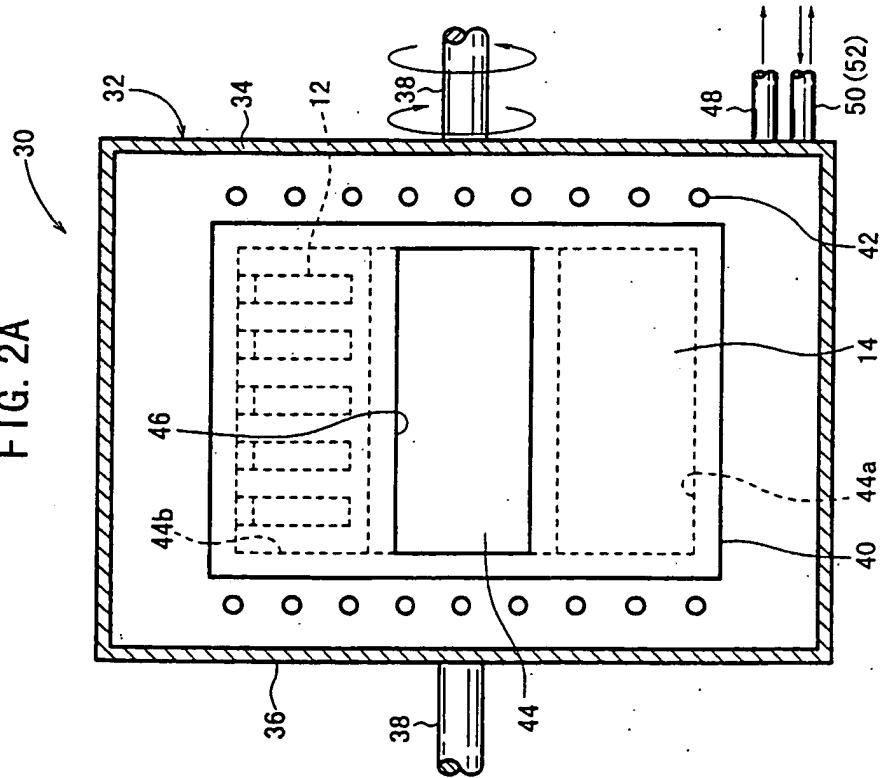
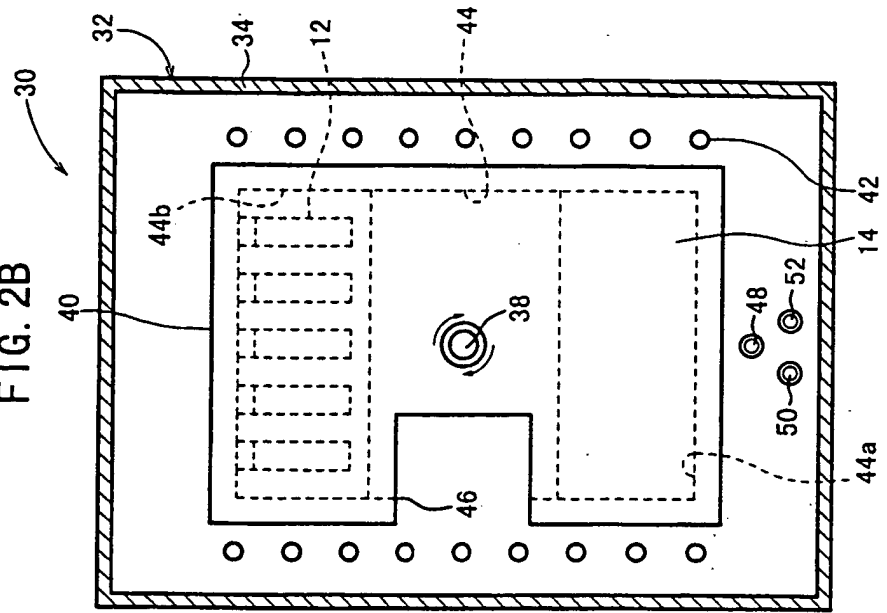


FIG. 2B



3/40

FIG. 3

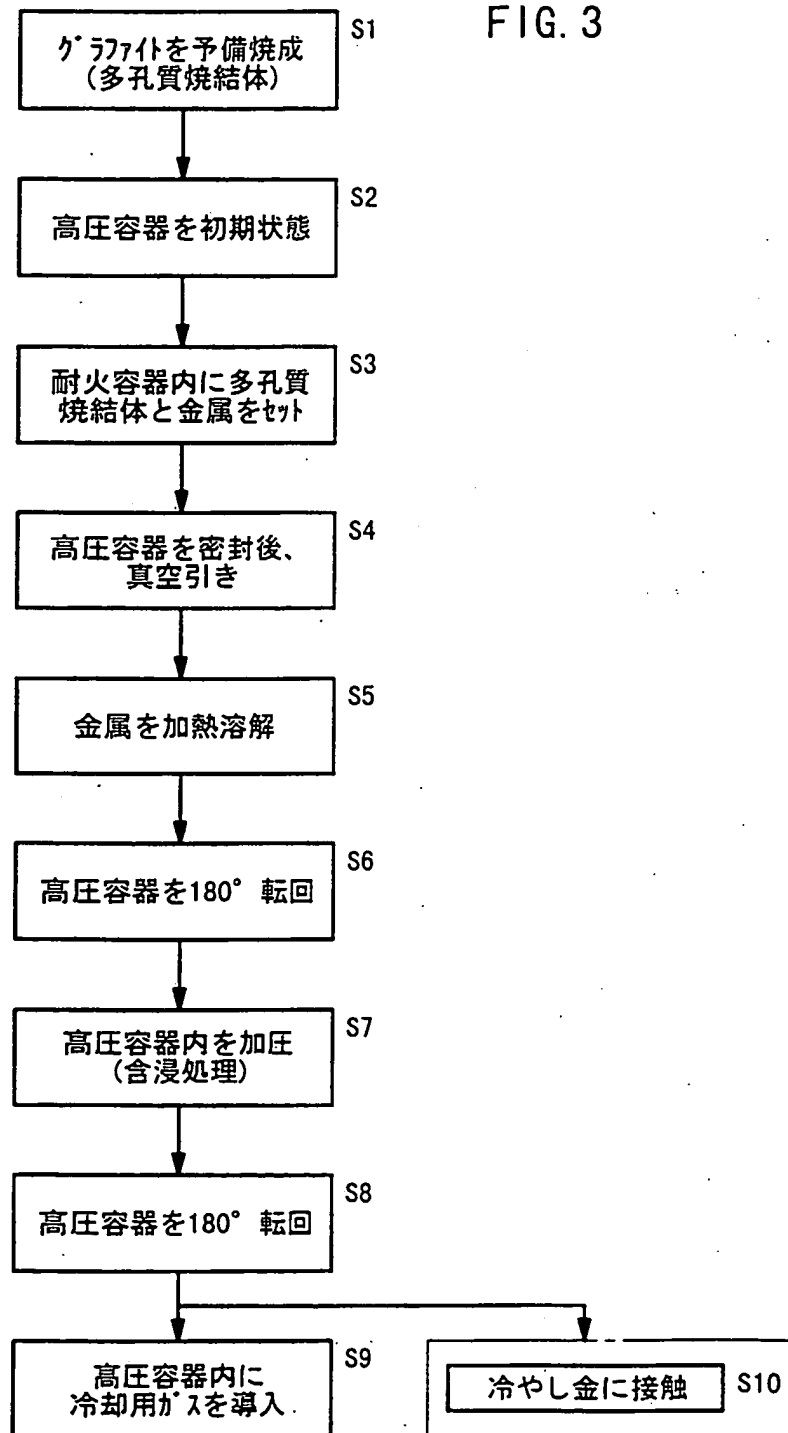


FIG. 4

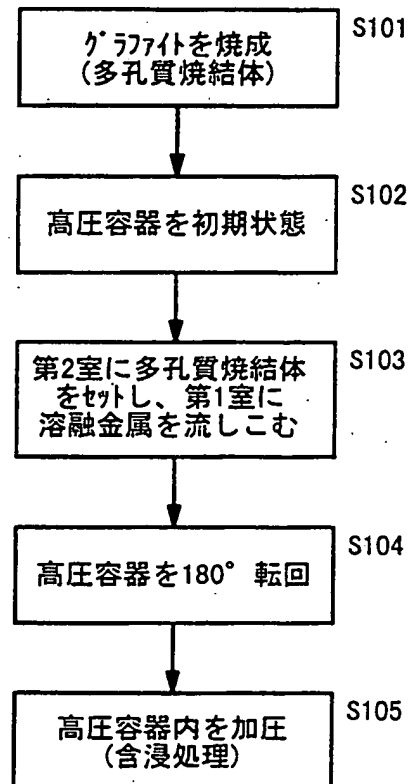
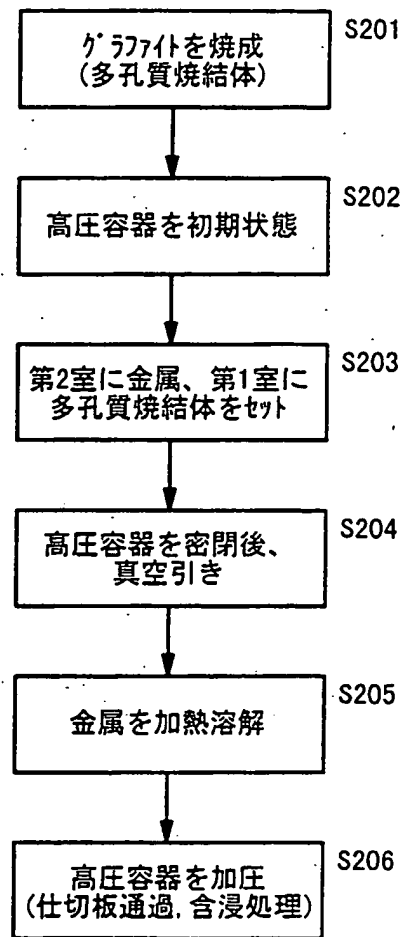
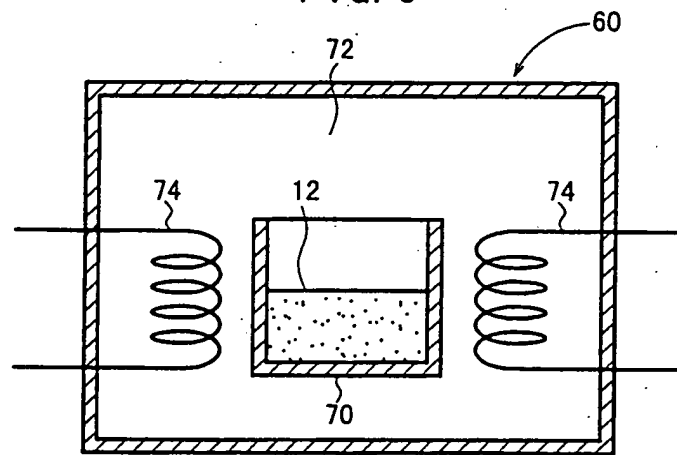


FIG. 5



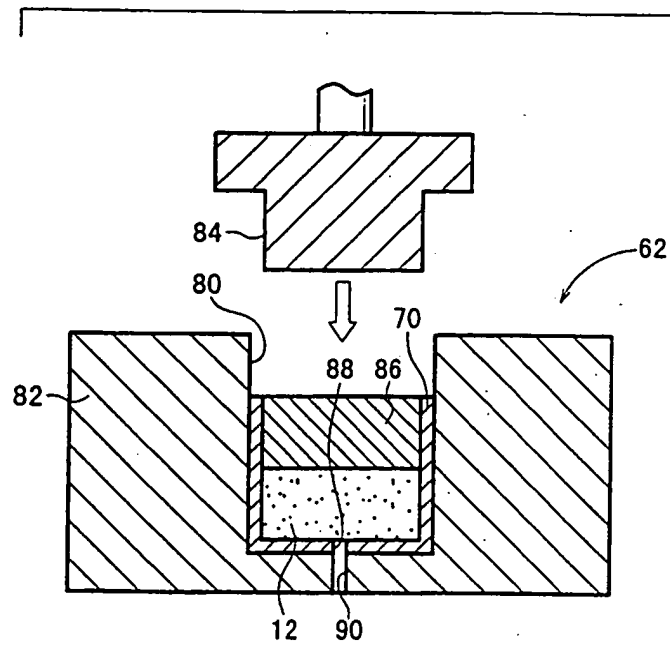
6/40

FIG. 6



7/40

FIG. 7



8/40

FIG. 8

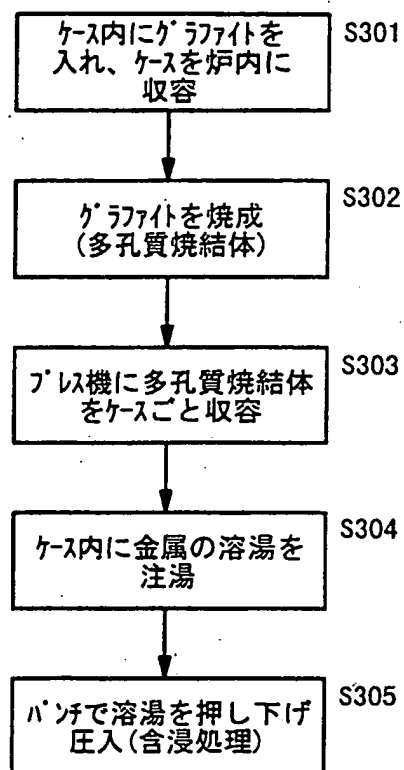
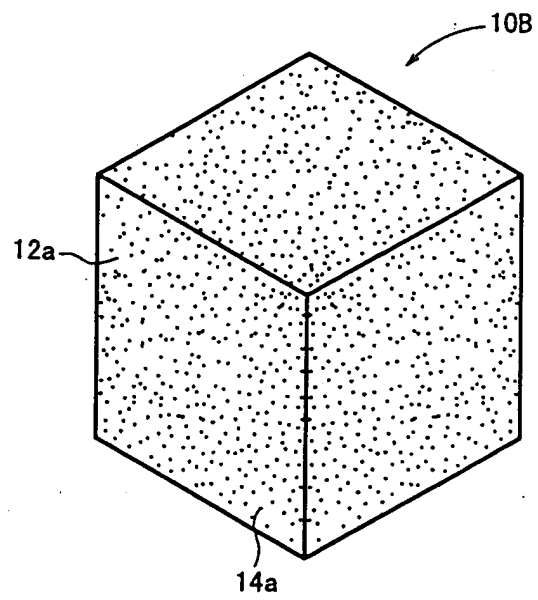
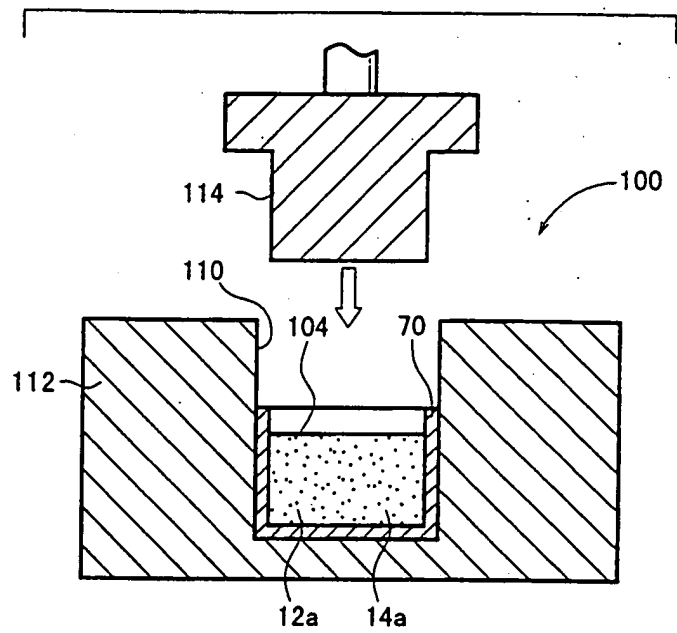


FIG. 9



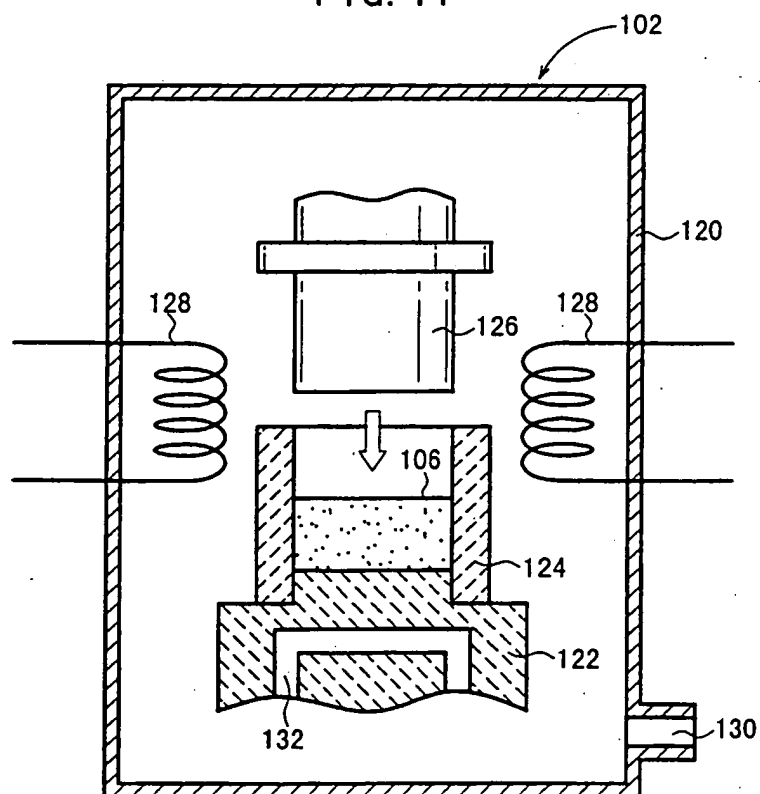
10/40

FIG. 10



11/40

FIG. 11



12/40

FIG. 12

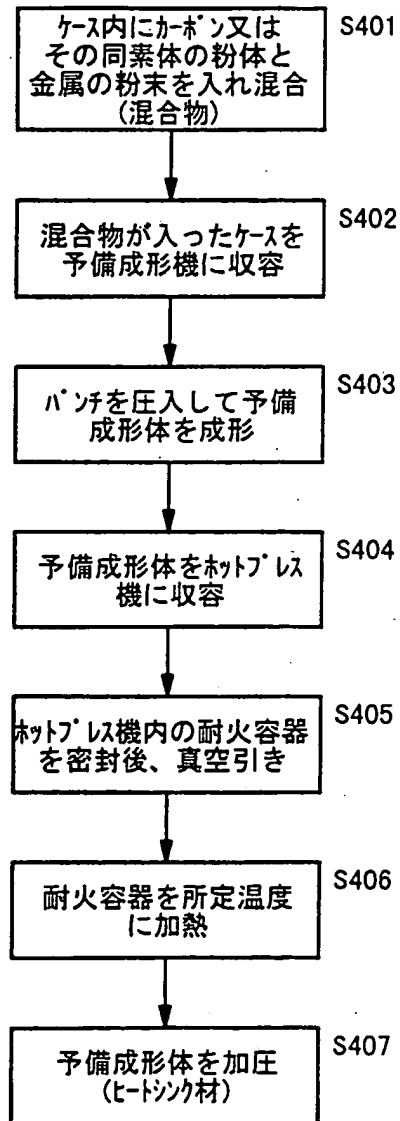


FIG. 13

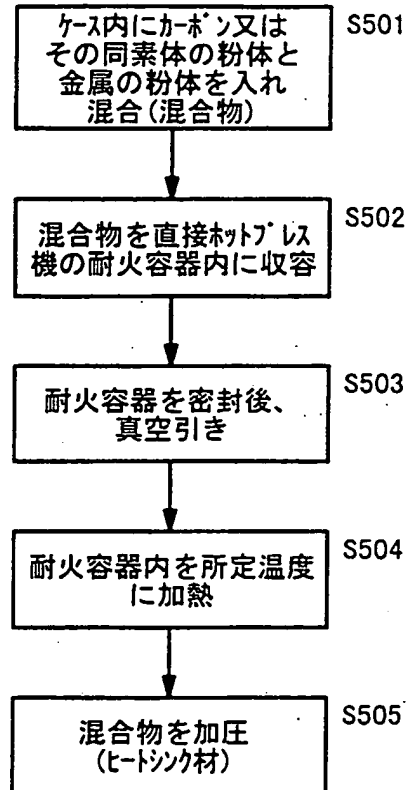


FIG. 14

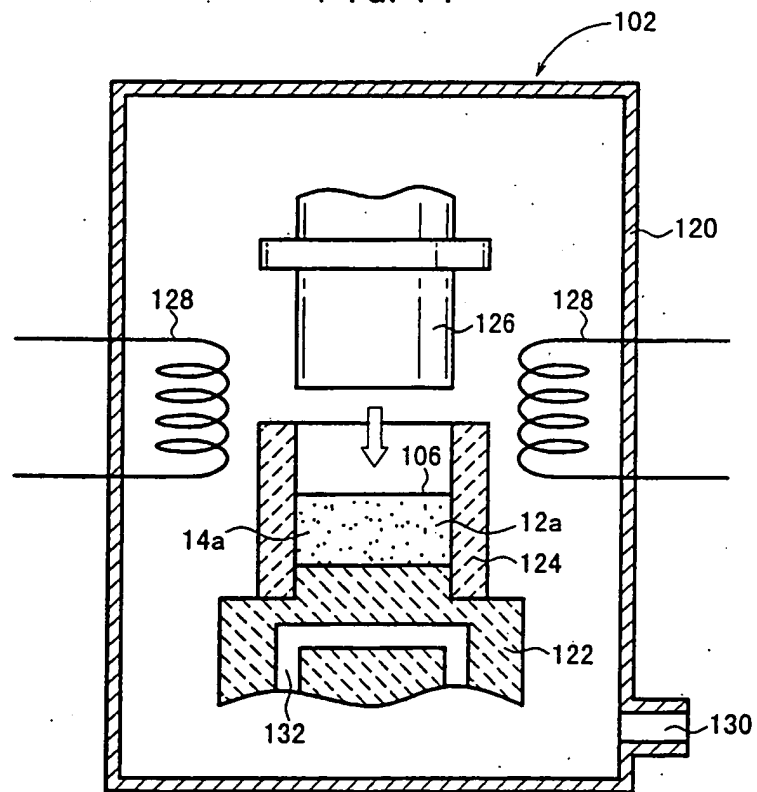


FIG. 15

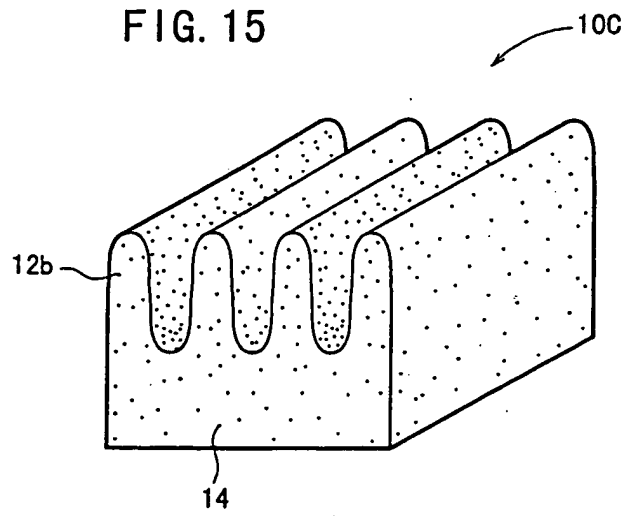


FIG. 16

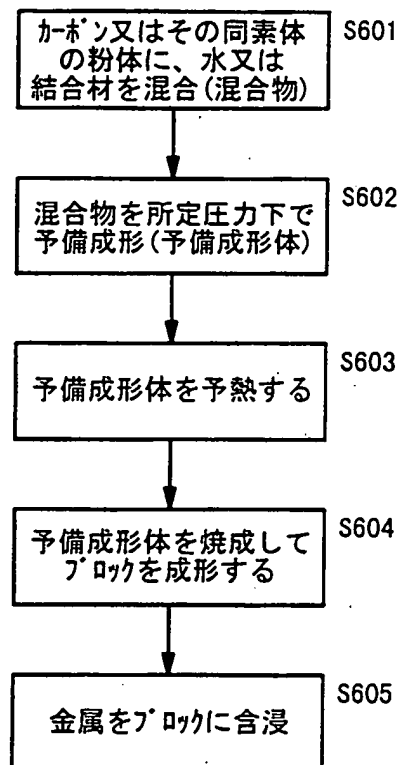


FIG. 17

サンプル	サイズ (mm)	粉末 種類	粉末 粒度 (μm)	充填法	金属	添加 元素	添加量 (wt%)	含浸 方法	含浸 圧力 (Mpa)	熱 伝導率 (W/mK)	熱 膨張率 ($\times 10^{-6}/\text{K}$)	耐水性	効果
PW-1	30 × 120 × 190	type -P	平均 120	無加圧	Cu	Nb	0.001	7'ス	60.0	321	14.0	△	カーバイド 生成
PW-2	30 × 120 × 191	type -S	平均 50	無加圧	Cu	Nb	0.001	7'ス	60.0	325	13.5	△	カーバイド 生成
PW-3	30 × 120 × 192	type -R	212- 1180	無加圧	Cu	Nb	0.001	7'ス	60.0	305	13.6	△	カーバイド 生成
PW-4	30 × 120 × 193	type -P	平均 120	無加圧	Cu	Nb	0.001	7'ス	60.0	321	14.0	△	カーバイド 生成
PW-5	30 × 120 × 194	type -P	平均 120	加圧 7MPa	Cu	Nb	0.001	7'ス	60.0	311	11.5	△	カーバイド 生成
PW-6	30 × 120 × 195	type -P	平均 120	加圧 25MPa	Cu	Nb	1.001	7'ス	60.0	301	9.5	△	カーバイド 生成

FIG. 18

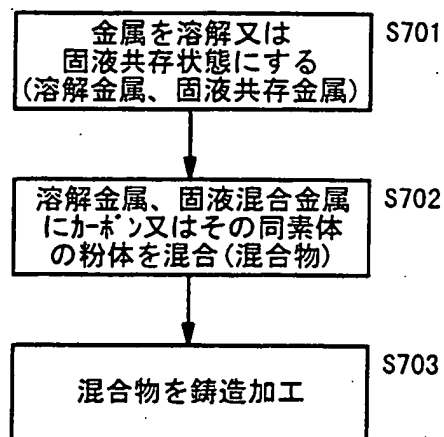


FIG. 19

サンプル	サイズ (mm)	金属	元素	添加量 (wt%)	含浸 方法	熱伝導率 (W/mK)		熱膨張率 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)		曲げ強度 (MPa)		耐水性	効果
						面	厚さ	面	厚さ	面	厚さ		
p1-1	20x60x60	Al	なし	なし	プレス	171	171	5.3	5.5	33.3	53.9	△	なし
p1-2	20x60x60	Cu	なし	なし	プレス	162	170	5.1	5.1	27.4	41.2	◎	なし
p2-1	20x60x60	Cu	Bi	2.00	プレス	168	178	5.0	5.1	28.4	45.1	◎	濡れ性
p2-2	20x60x60	Cu	Sb	0.50		178	186	5.0	5.1	27.4	41.2		
p2-3	20x60x60	Cu	Te	0.50		180	189	5.0	5.1	26.5	39.2		
p2-4	20x60x60	Cu	Te	2.00		172	178	4.9	5.0	25.5	38.2		
p2-5	20x60x60	Cu	Te, Bi	0.5, 0.5		169	176	5.0	5.0	26.5	39.2		
p2-6	20x60x60	Cu	Te, Pb	0.5, 2.0		172	185	5.0	5.0	27.4	41.2		
p3-1	20x60x60	Cu	Be	1.00	プレス	184	204	5.0	5.0	34.3	57.8	△	カーバイト 生成
p3-2	20x60x60	Cu	Cr	0.50		187	192	5.0	5.0	37.2	58.8		
p3-3	20x60x60	Cu	Mn	0.50		175	181	5.0	5.0	34.3	56.8		
p3-4	20x60x60	Cu	Nb	0.05		187	190	5.0	5.0	34.3	56.8		
p3-5	20x60x60	Cu	Zr	0.50		172	174	5.0	5.0	24.5	40.2		
p4-1	20x60x60	Cu	Te, Ni	0.5, 0.5	プレス	165	177	5.0	5.0	27.4	45.1	○	複合添加
p5-1	20x60x60	Cu	なし	なし	ガス	170	188	5.0	5.0	27.4	41.2	◎	なし
p6-1	10x85x180	Cu	Te	2.00	ガス	185	196	5.0	5.1	26.5	39.2	◎	濡れ性
p6-2	20x60x60	Cu	Te	2.00		192	204	5.0	5.0	28.4	42.1		

FIG. 20

サンプル	サイズ (mm)	金属	元素	添加 量 (wt%)	含浸 方法	熱伝導率 (W/mK)		熱膨張率 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)		曲げ強度 (Mpa)		耐 水 性	効果
						面	厚さ	面	厚さ	面	厚さ		
m1-1	20x60x60	Al	なし	なし	プレス	161	187	4.5	5.6	34.3	56.8	Δ	なし
m1-2	20x60x60	Cu	なし	なし	プレス	145	181	4.5	5.1	28.4	42.1	\odot	なし
m2-1	20x60x60	Cu	Te	0.50	プレス	168	199	4.5	5.1	26.5	39.2	\odot	濡れ性
m3-1	20x60x60	Cu	Be	1.00	プレス	184	213	4.5	5.1	36.3	59.8	Δ	カーバイト 生成
m3-2	20x60x60	Cu	Cr	0.50		170	193	4.5	5.1	37.2	60.8		
m3-3	20x60x60	Cu	Mn	0.50		165	192	4.5	5.1	35.3	57.8		
m3-4	20x120x190	Cu	Nb	0.05		162	192	4.5	5.1	35.3	57.8		
m3-5	20x60x60	Cu	Nb	0.05		169	207	4.5	5.1	35.3	57.8		
m3-6	20x60x60	Cu	Zr	0.50		158	182	4.5	5.1	32.3	52.9		
m5-1	20x60x60	Cu	なし	なし	ガス	166	198	4.5	5.1	25.5	38.2	\odot	なし

FIG. 21

サンプル	サイズ (mm)	金属	添加 元素	添加量 (wt%)	含浸 方法	含浸 圧力 (Mpa)	熱伝導 率 (W/mK)	熱膨張率 ($\times 10^{-6}/K$)		曲げ強度 (MPa)		圧縮強度 (MPa)		耐水性	効果
								面	厚さ	面	厚さ	面	厚さ		
n1-1	20×60×60	Al	無	無	7/以	26.7	156	5.5	6.0	31.4	51.9	46.1	51.0	△	無
n1-4	20×120×190	Al	無	無	7/以	60.0	185	5.5	6.5					△	無
n1-2	20×60×60	Cu	無	無	7/以	26.7	150	3.8	4.5	26.5	39.2			◎	無
n1-3	20×120×190	Cu	無	無	7/以	26.7	147	268	4.5	26.5	39.2			◎	無
n2-1	20×60×60	Cu	Te	0.500	7/以	26.7	190	351	4.5	26.5	39.2			◎	無
n3-1	20×60×60	Cu	Be	1.000	7/以	26.7	183	341	4.5	38.2	62.7			△	カハ・仆・生成
n3-2	20×120×190	Cu	Be	1.000	7/以	156.1	189	342	4.0	37.2	61.7			△	カハ・仆・生成
n3-3	20×60×60	Cu	Cr	0.500	7/以	26.7	180	320	4.5	36.3	59.8			△	カハ・仆・生成
n3-4	20×60×60	Cu	Mn	0.500	7/以	26.7	176	330	4.5	34.3	55.9	42.1	48.0	△	カハ・仆・生成
n3-5	20×60×60	Cu	Nb	0.050	7/以	156.1	198	336	4.5	35.3	57.8			△	カハ・仆・生成
n3-6	20×120×190	Cu	Nb	0.050	7/以	26.7	167	309	4.5	35.3	57.8			△	カハ・仆・生成
n3-7	20×60×60	Cu	Zr	0.500	7/以	26.7	158	312	4.5	34.3	56.8			△	カハ・仆・生成
n3-8	20×120×190	Cu	Nb	0.001	7/以	43.3	182	352	4.5			40.2	51.9	△	カハ・仆・生成
n3-9	20×120×190	Cu	Nb	0.001	7/以	60.0	182	363	4.0			42.1	51.9	△	カハ・仆・生成
n3-10	20×120×190	Cu	Nb	1.100	7/以	60.0	196	359	4.0			51.0	58.8	△	カハ・仆・生成
n3-11	20×120×190	Cu	Be	1.900	7/以	60.0	186	366	4.5			57.8	64.7	△	カハ・仆・生成
n3-12	20×120×190	Cu	Ni, Sn	9.4, 6.7	7/以	60.0	190	343				51.9	51.0	◎	複合添加
n3-13	20×120×190	Cu	Ni, Si, P	1.0, 0.23, 0.04	7/以	60.0	190	353				48.0	51.9	◎	複合添加
n3-14	20×120×190	Cu	Mn	4.180	7/以	60.0	181	352				51.0	54.9	△	カハ・仆・生成
n3-15	20×120×190	Cu	Cr	2.870	7/以	60.0	195	387				48.0	51.9	△	カハ・仆・生成
n3-16	20×120×190	Cu	Zr	4.490	7/以	60.0	207	367				53.9	63.7	△	カハ・仆・生成
n3-17	20×120×190	Cu	Si	11.300	7/以	26.7	157	333				53.9	60.8	△	カハ・仆・生成
n3-18	20×120×190	Cu	Si	10.900	7/以	60.0	159	316				56.8	68.6	◎	固液範囲拡大
n3-19	20×120×190	Cu	Si	5.170	7/以	153.0	165	345				52.9	62.7	◎	固液範囲拡大
n3-20	20×120×190	Cu	Si	5.300	7/以	43.3	163	325				54.9	60.8	◎	固液範囲拡大
n5-1	20×60×60	Cu	無	無	7/以	26.7	170	320	4.5	26.5	39.2			◎	無
n7-1	20×120×190	Al	Be	2.000	7/以	60.0	177	332	5.0			57.8	62.7	△	カハ・仆・生成
n7-2	20×120×190	Al	Si	5.000	7/以	60.0	169	329	5.0			50.0	61.7	◎	固液範囲拡大
n7-3	20×120×190	Al	Si	12.000	7/以	60.0	181	327	5.0			56.8	68.6	◎	固液範囲拡大

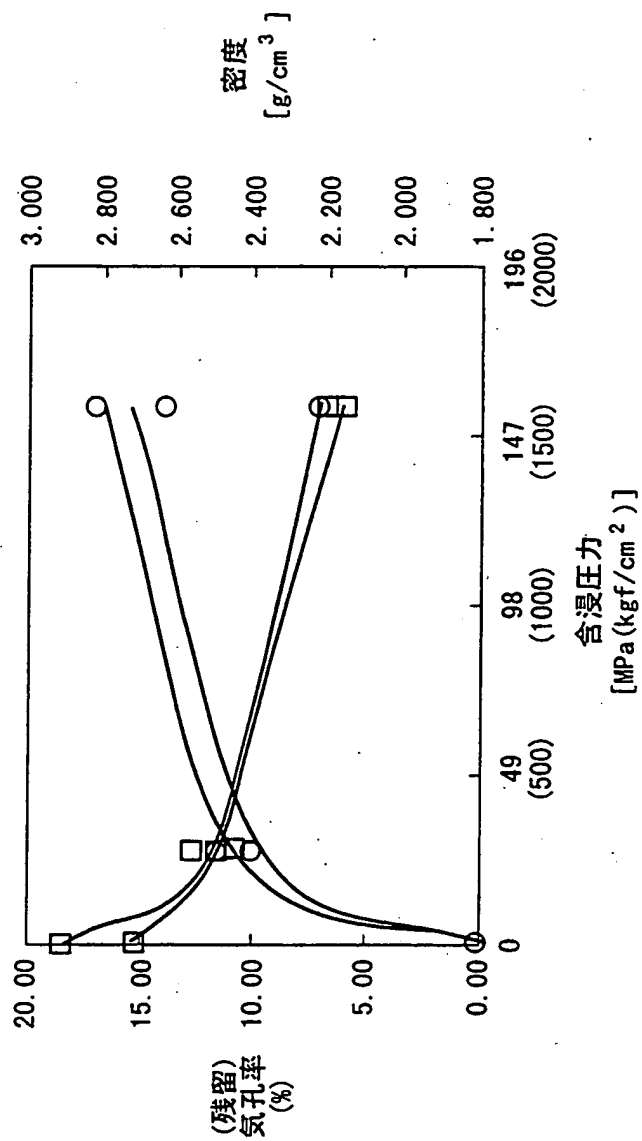
FIG. 22

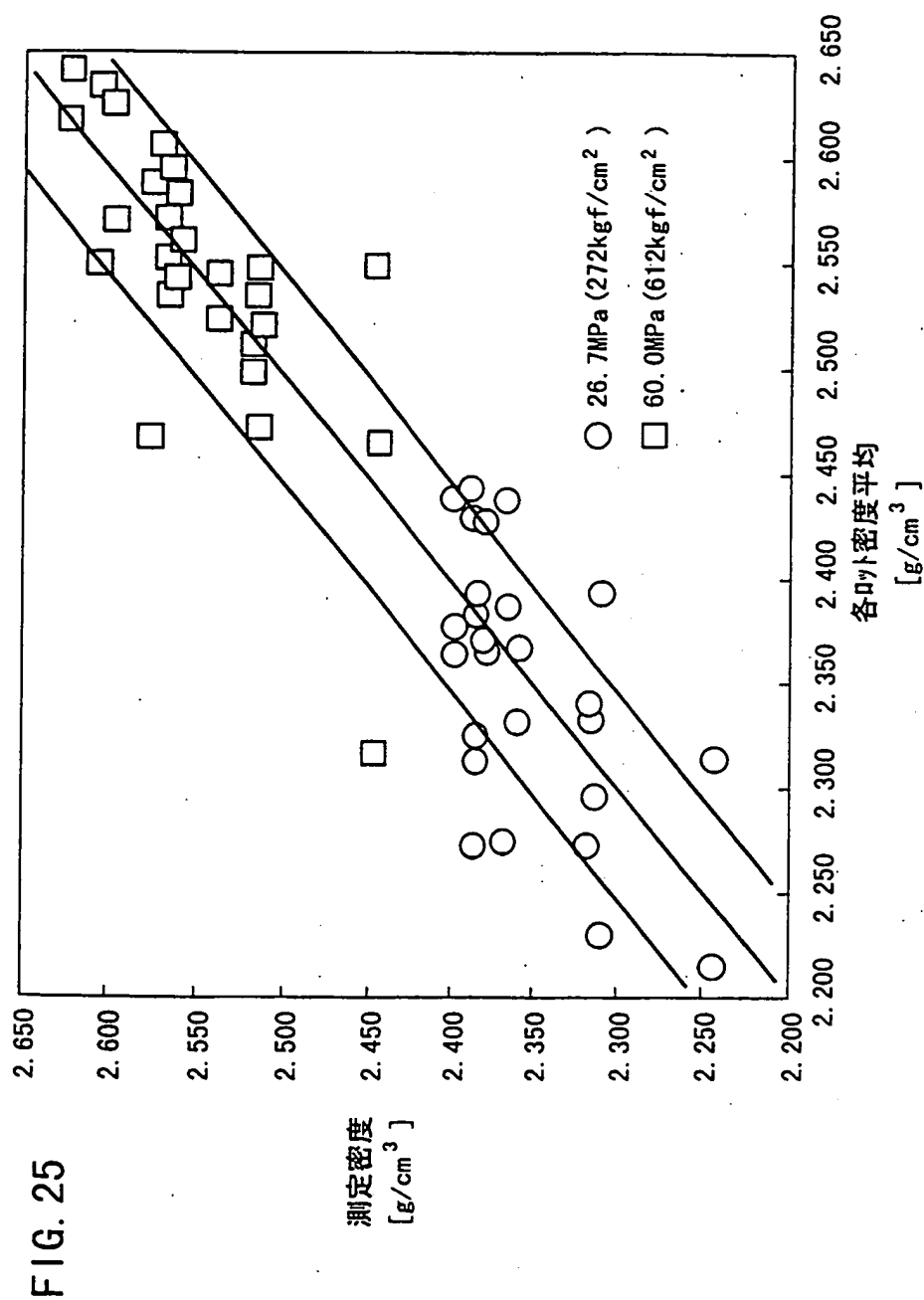
カーボンの 種類	熱伝導率 (W/mK)		熱膨張率 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)		曲げ強度 (MPa)	
	面方向	厚さ方向	面方向	厚さ方向	面方向	厚さ方向
P	150	160	3.2	3.2	34.3	49.0
M	140	168	3.2	3.2	29.4	44.1
N	150	255	1.8	2.3	14.7	29.4

FIG. 23

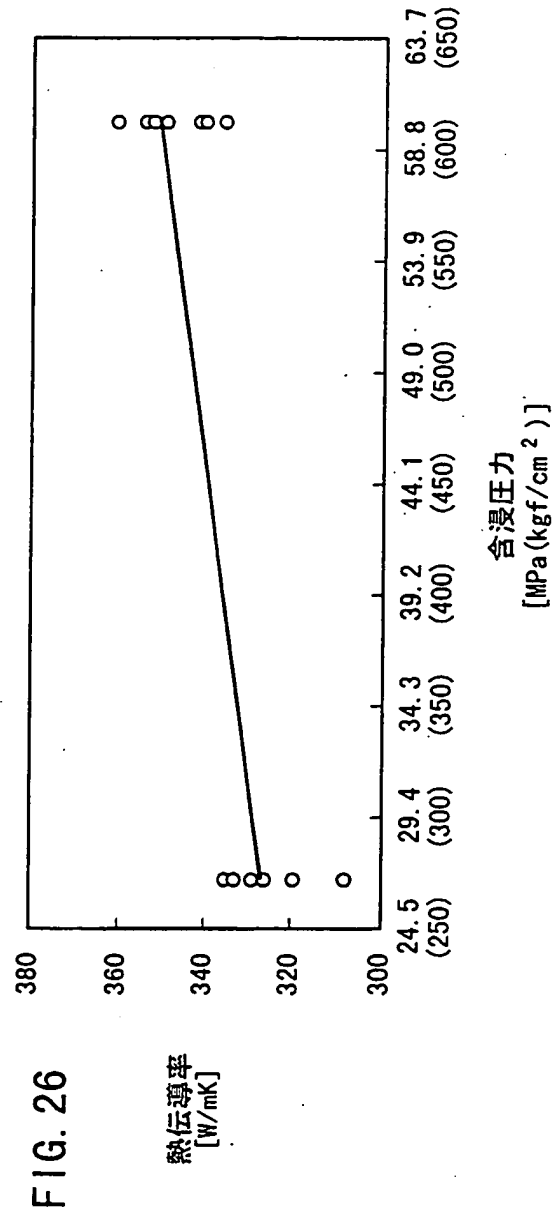
サンプル	サイズ (mm)	金属	元素	添加 量 (wt%)	含浸 方法	熱伝導率 (W/mK)		熱膨張率 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)		曲げ強度 (MPa)		耐 水 性	効果
						面	厚さ	面	厚さ	面	厚さ		
p1-2	20x60x60	Cu	なし	なし	ﾌﾟﾚｽ ｶﾞｽ	162	170	5.1	5.1	27.4	41.2	◎	なし
p5-1	20x60x60					170	188	5.0	5.0	27.4	41.2		
p2-4	20x60x60	Cu	Te	2	ﾌﾟﾚｽ ｶﾞｽ	172	178	4.9	5.0	25.5	38.2	◎	濡れ性
p6-2	20x60x60	Cu	Te	2		192	204	5.0	5.0	28.4	42.1		
m1-2	20x60x60	Cu	なし	なし	ﾌﾟﾚｽ ｶﾞｽ	145	181	4.5	5.1	28.4	42.1	◎	なし
m5-1	20x60x60					166	198	4.5	5.1	25.5	38.2		
n1-2	20x60x60	Cu	なし	なし	ﾌﾟﾚｽ ｶﾞｽ	150	310	3.8	4.5	26.5	39.2	◎	なし
n5-1	20x60x60	Cu				170	320	3.8	4.5	26.5	39.2		

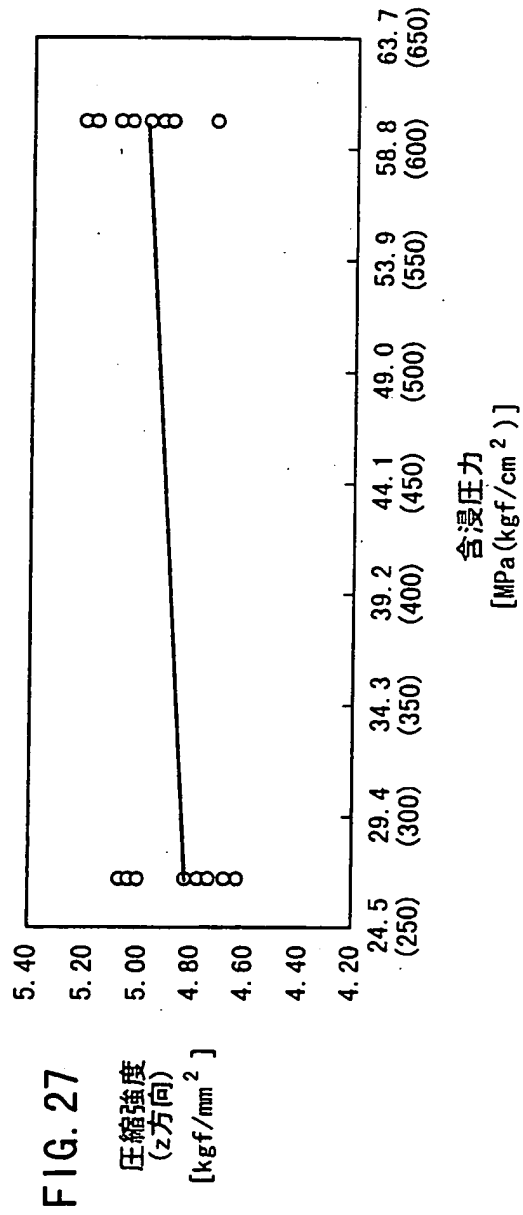
FIG. 24



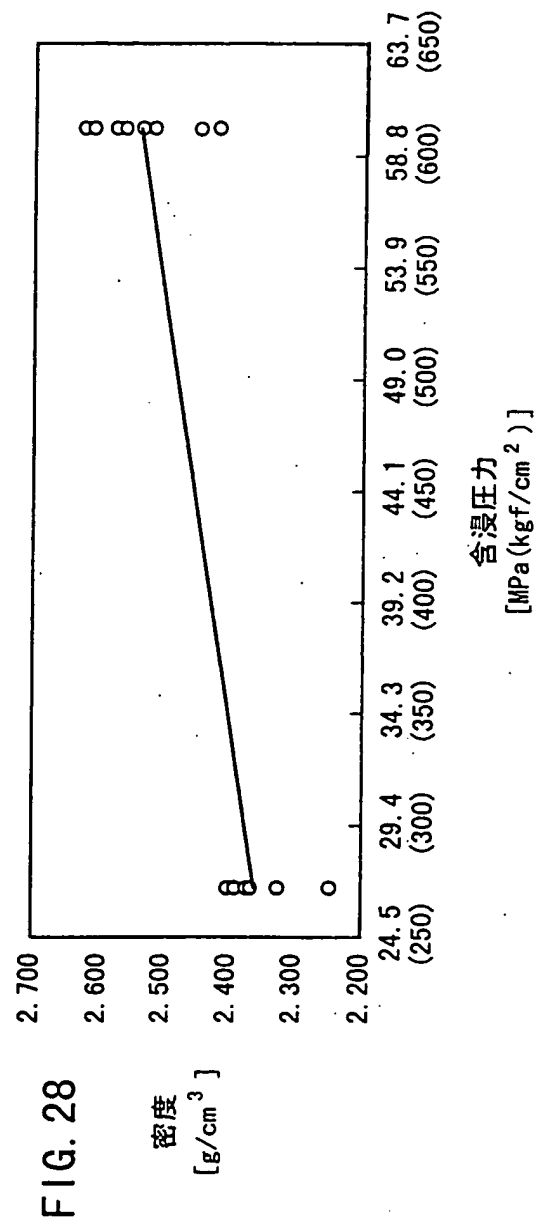


26/40





28/40



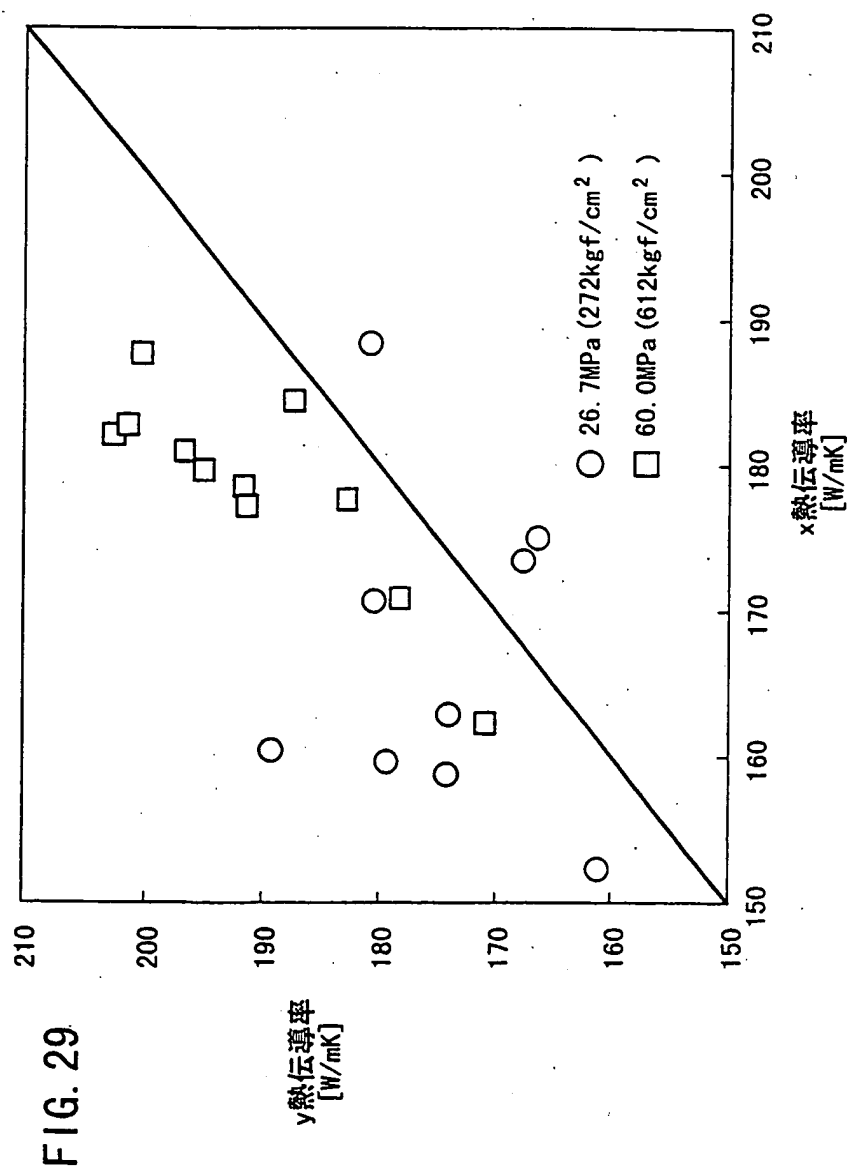


FIG. 30

No.	気孔率 [%]	気孔径 [μm]	Ni めっき	Si 含浸	含浸 温度 [$^{\circ}\text{C}$]	加圧力 [Mpa (kgf/cm ²)]	加圧時間 [sec]	冷却速度 [$^{\circ}\text{C}/\text{min}$]	Si/Cuの 反応状況	含浸状況
サンプル 1	35	70	無	無	1130	0.78(8)	60	260	Δ	Δ
サンプル 2	44	22	無	無	1130	7.84(80)	20	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 3	59	42	無	有	1130	11.8(120)	10	480	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 4	15	5	有	無	1130	23.5(240)	10	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 5	59	42	無	有	1180	0.78(8)	60	900	Δ	Δ
サンプル 6	15	5	無	無	1180	3.92(40)	20	480	\bigcirc	Δ
サンプル 7	59	42	無	有	1180	11.8(120)	10	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 8	44	22	無	無	1180	23.5(240)	10	620	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 9	44	22	無	有	1230	0.78(8)	20	480	\bigcirc	Δ
サンプル 10	59	42	有	無	1230	3.92(40)	35	790	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 11	35	70	無	無	1230	7.84(80)	100	620	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 12	44	22	無	有	1230	23.5(240)	5	620	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 13	59	42	無	無	1280	3.92(40)	50	790	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 14	35	70	無	無	1280	7.84(80)	35	480	Δ	\bigcirc
サンプル 15	44	22	有	無	1280	7.84(80)	5	620	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 16	59	42	無	有	1280	11.8(120)	10	790	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 17	20	21	無	無	1150	156.1	3	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 18	20	19	無	無	1150	156.1	5	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 19	20	23	無	無	1140	69.3	5	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 20	20	22	無	無	1145	26.7	7	900	\bigcirc	\bigcirc

注) Si/Cuの反応 : \bigcirc 反応無し \bigcirc 反応少 Δ 反応大
 Cuの含浸状況 : \bigcirc 含浸良好 \bigcirc 含浸やや不十分 Δ 含浸不十分

FIG. 31

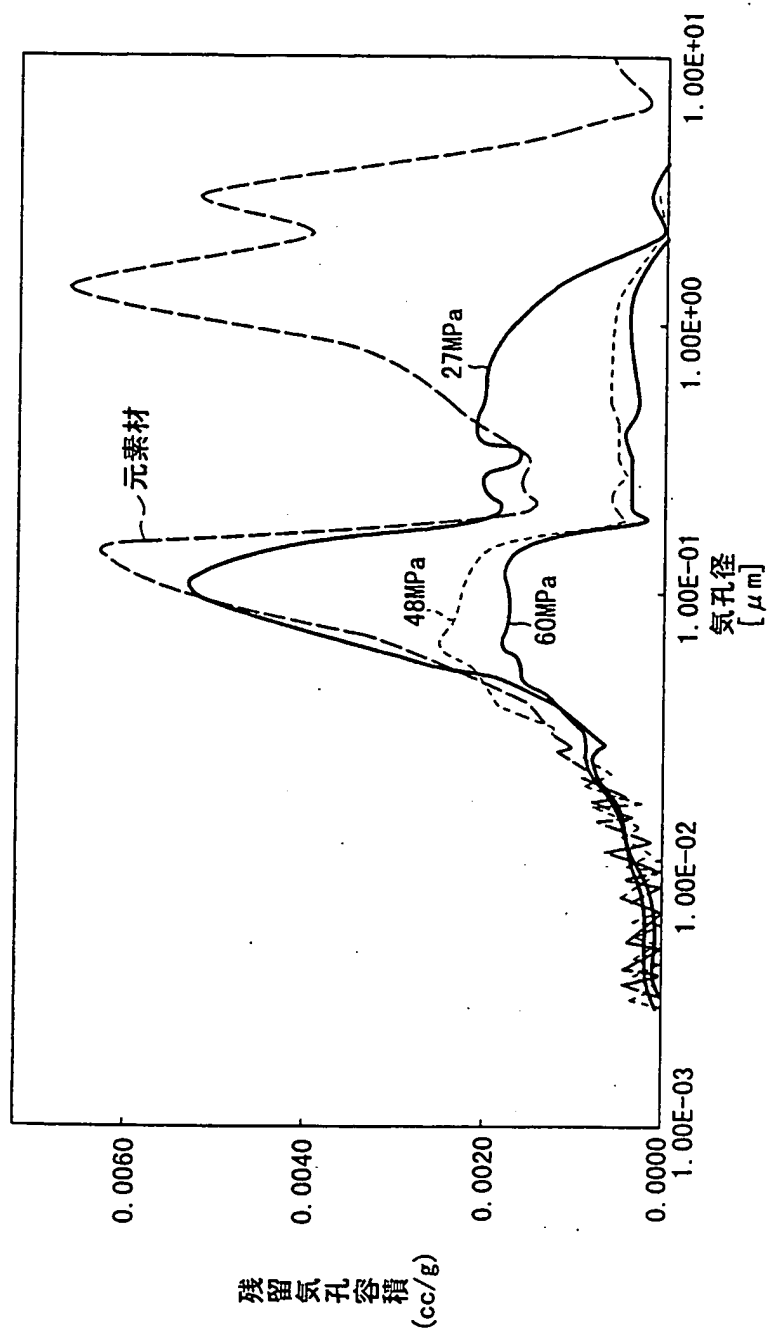


FIG. 32

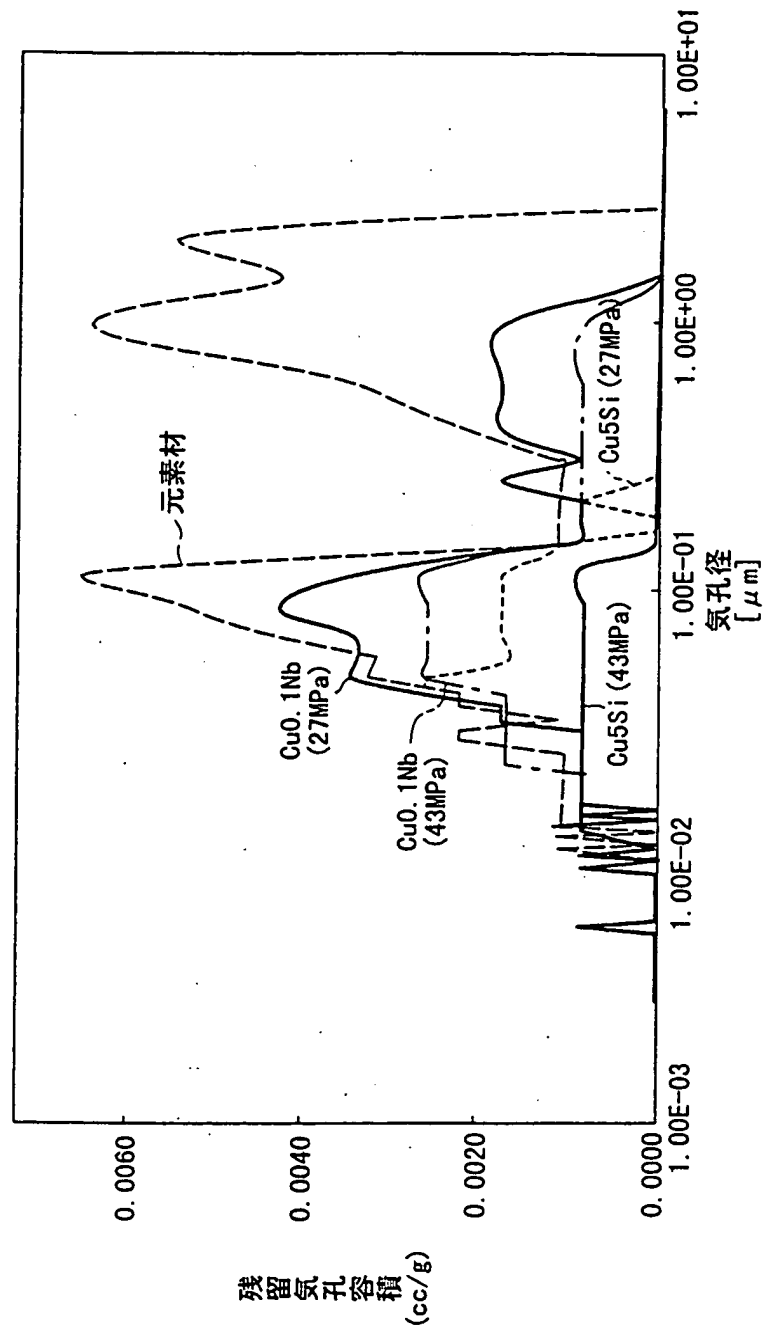
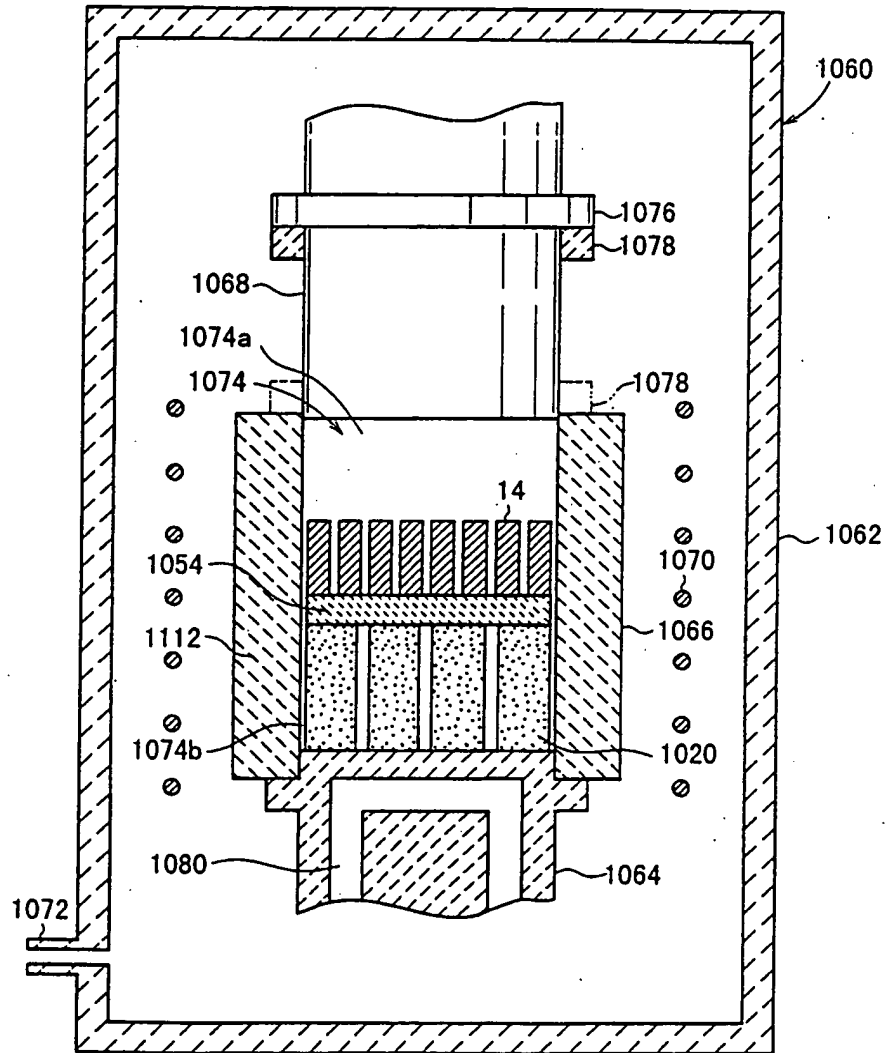
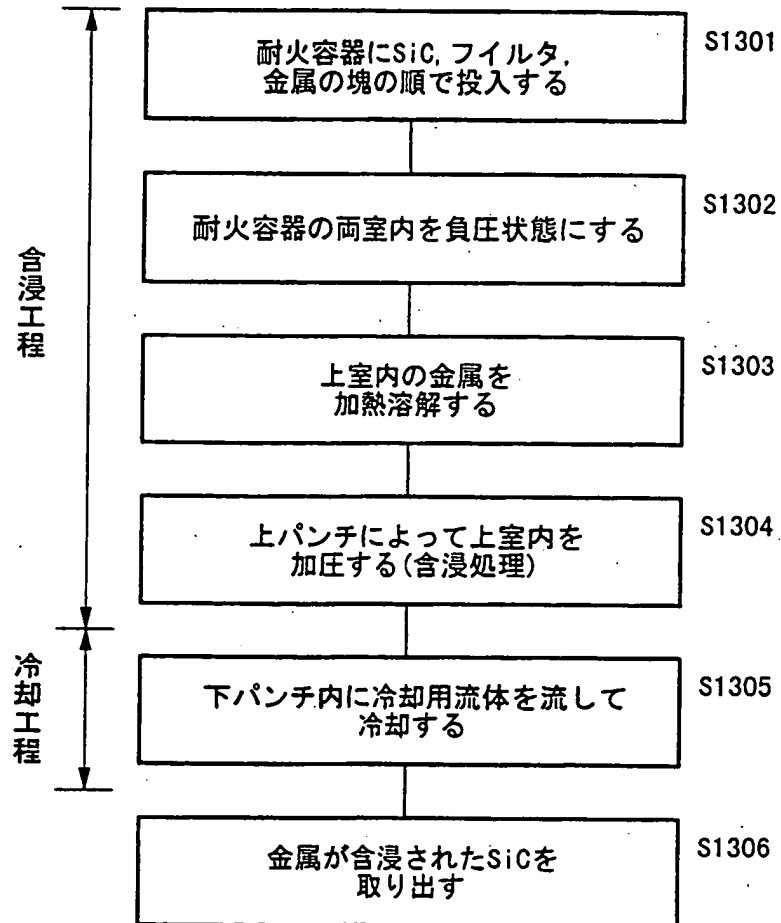


FIG. 33



34/40

FIG. 34



35/40

FIG. 35A

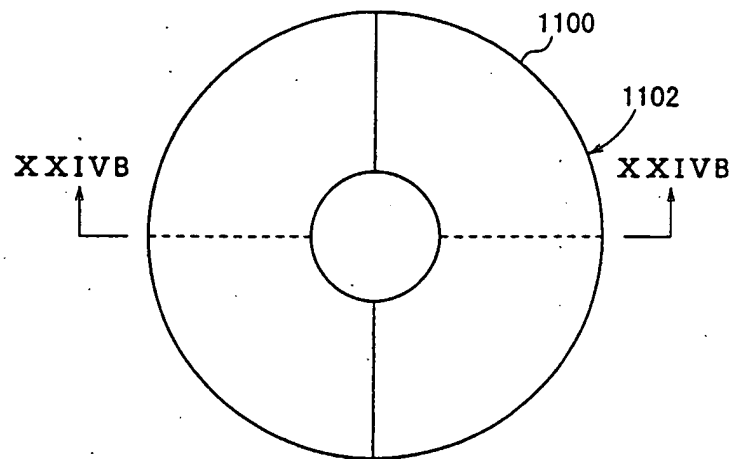


FIG. 35B



FIG. 36

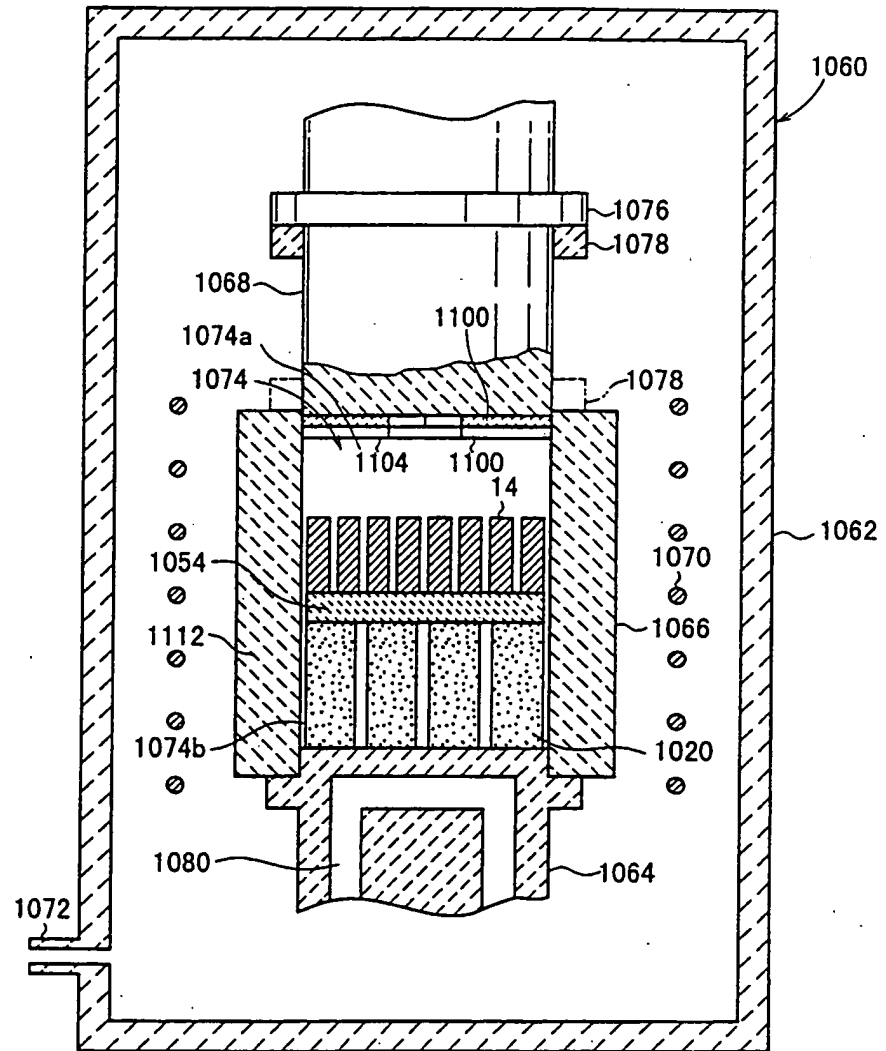


FIG. 37

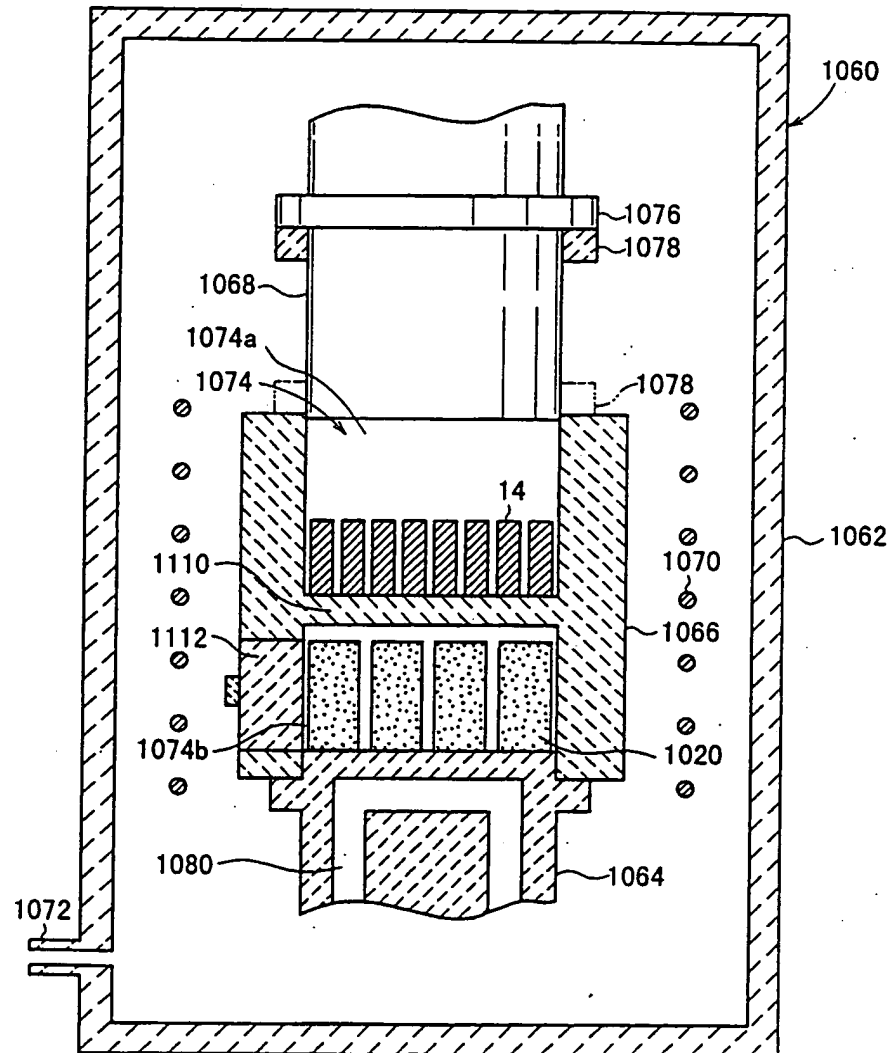
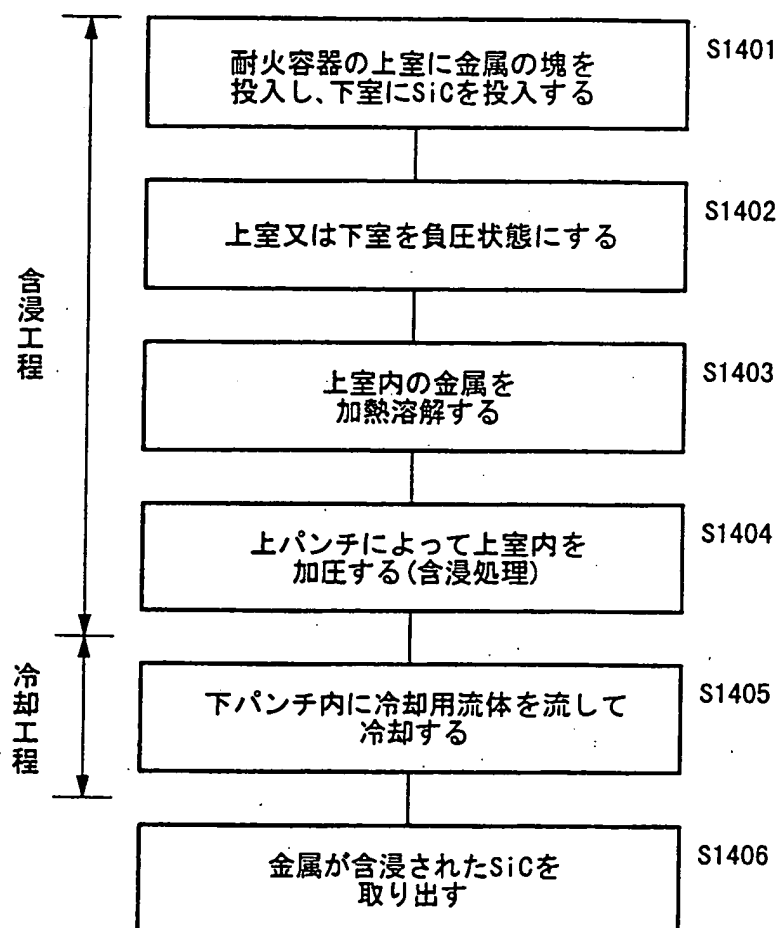
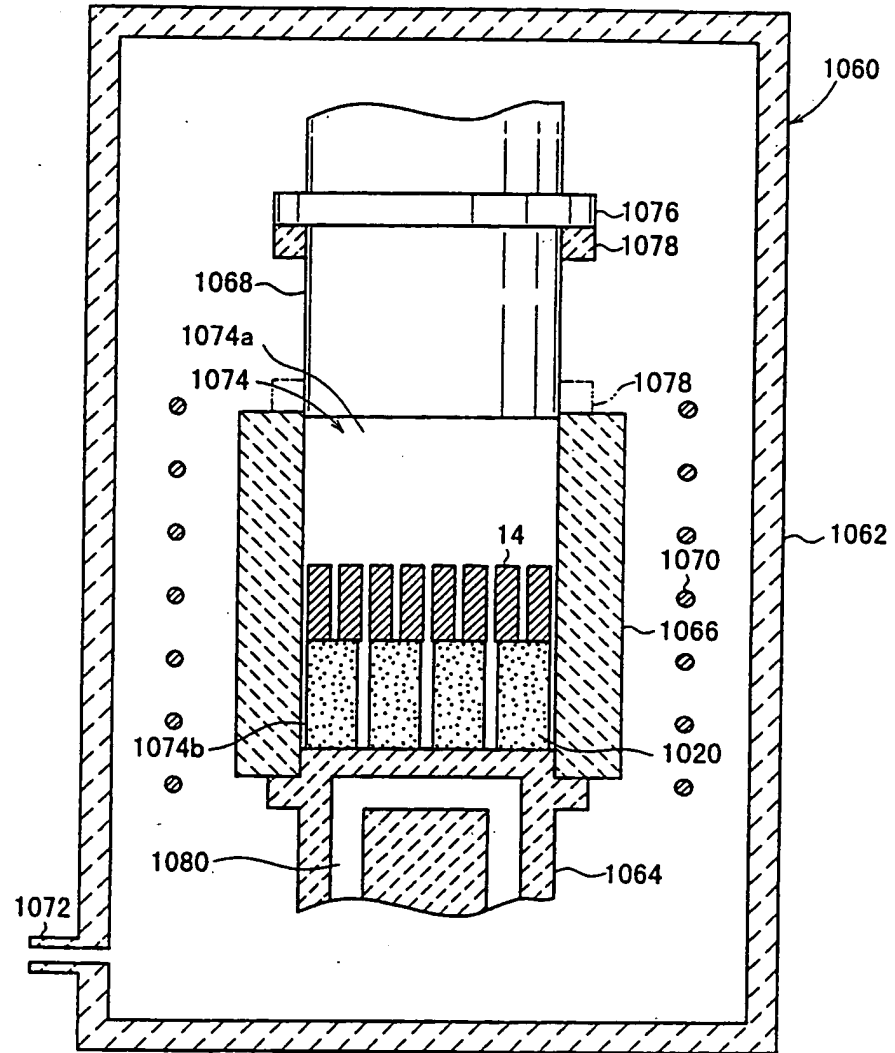


FIG. 38



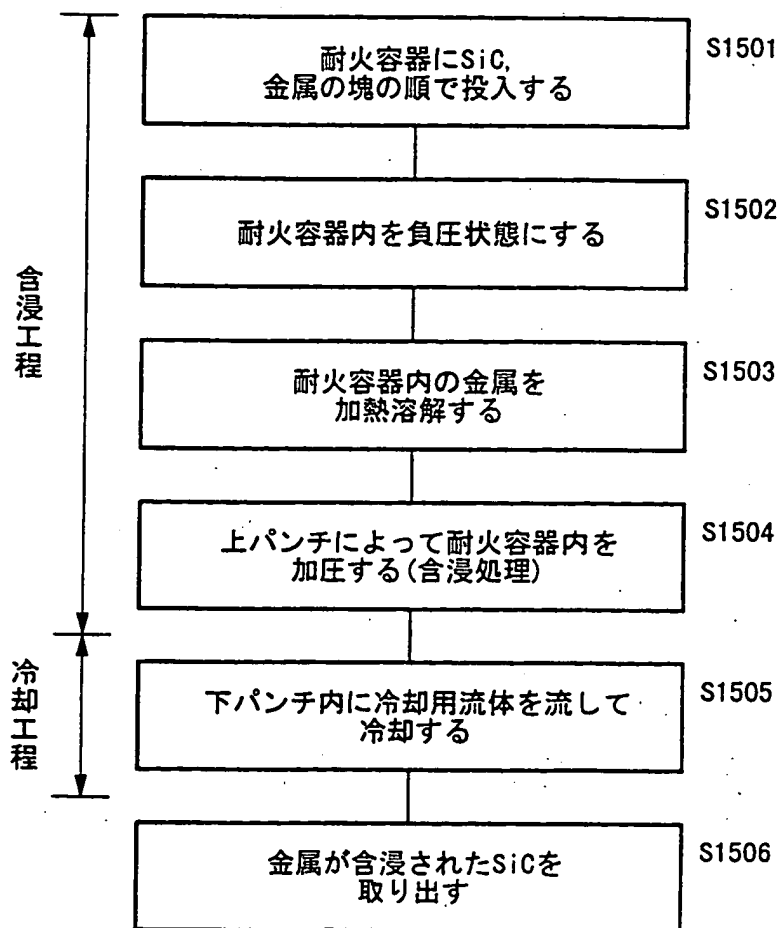
39/40

FIG. 39



40/40

FIG. 40



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internat. application No.

PCT/JP00/09133

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int. Cl.⁷ H01L23/373

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int. Cl.⁷ H01L23/373Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 11-67991, A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 09 March, 1999 (09.03.99), Claims 1 to 15; Par. Nos. [0025] to [0027], [0043] to [0062]; Figs. 1 to 7 (Family: none)	1, 2, 4-8, 11- 15, 18-30, 35-65
X	JP, 4-329845, A (PECHINEY RECHERCHE), 18 November, 1992 (18.11.92) & EP, 504532, A1	1, 3, 5-17, 20-25, 44-50, 57, 58, 65
Y	Same information as indicated above for applicant: (PECHINEY RECHERCHE)	26-30, 51-56

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
 "A" document defining the general state of the art which is not
 considered to be of particular relevance
 "E" earlier document but published on or after the international filing
 date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is
 cited to establish the publication date of another citation or other
 special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other
 means
 "P" document published prior to the international filing date but later
 than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or
 priority date and not in conflict with the application but cited to
 understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
 considered novel or cannot be considered to involve an inventive
 step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
 considered to involve an inventive step when the document is
 combined with one or more other such documents, such
 combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
28 March, 2001 (28.03.01)Date of mailing of the international search report
10 April, 2001 (10.04.01)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. cl. H01L23/373

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. cl. H01L23/373

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2001年

日本国登録実用新案公報 1994-2001年

日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 11-67991, A (住友電気工業株式会社) 9. 3月. 1999 (09. 03. 99) 請求項1-15, 段落 [0025] - [0027], 段落 [0043] - [0062], 図1-7 (ファミリーなし)	1, 2, 4-8, 11- 15, 18-30, 35- 65
X	J P, 4-329845, A (ベシネ・ルシエルシュ) 18. 11 月. 1992 (18. 11. 92) & EP, 504532, A1	1, 3, 5-17, 20- 25, 44-50, 57, 58, 65
Y	同 上	26-30, 51-56

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

28. 03. 01

国際調査報告の発送日

10.04.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

市川 裕 司



4 R

7128

電話番号 03-3581-1101 内線 3425

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2001年7月5日 (05.07.2001)

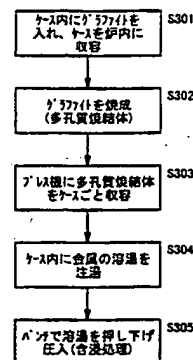
PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/48816 A1

- (51) 国際特許分類: H01L 23/373 (ISHIKAWA, Shuhei) [JP/JP]. 三井 任 (MITSUI, Tsutomu) [JP/JP]. 鈴木 健 (SUZUKI, Ken) [JP/JP]. 中山信亮 (NAKAYAMA, Nobuaki) [JP/JP]. 竹内広幸 (TAKEUCHI, Hiroyuki) [JP/JP]. 安井誠二 (YASUI, Seiji) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/09133
- (22) 国際出願日: 2000年12月22日 (22.12.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願平 11/368108
1999年12月24日 (24.12.1999) JP
特願2000/80833 2000年3月22日 (22.03.2000) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本碍子株式会社 (NGK INSULATORS, LTD.) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 Aichi (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 石川 修平
- (74) 代理人: 千葉剛宏, 外 (CHIBA, Yoshihiro et al.); 〒151-0053 東京都渋谷区代々木2丁目1番1号 新宿マインズタワー16階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): CN, KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (DE, FR, GB, IT).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: HEAT SINK MATERIAL AND METHOD OF MANUFACTURING THE HEAT SINK MATERIAL

(54) 発明の名称: ヒートシンク材及びその製造方法



S301...PUT GRAPHITE IN A CASE, AND STORE THE CASE IN A FURNACE.
 S302...BAKE THE GRAPHITE (POROUS SINTERED BODY)
 S303...STORE THE POROUS SINTERED BODY AS CONTAINED IN THE CASE IN A PRESS.
 S304...POUR A MOLTEN METAL OF A METAL IN THE CASE.
 S305...PRESS DOWN THE MOLTEN METAL WITH A PUNCH FOR PRESS FITTING (IMPRESSION TREATMENT)

(57) Abstract: A method of manufacturing a heat sink material, comprising the steps of putting graphite in a case (70) and storing the case in a furnace (Step S301), baking the inside of the furnace (60) so as to manufacture a porous sintered body (12) with graphite (Step S302), taking out the porous sintered body (12) as contained in the case (70) from the furnace (60), and storing the porous sintered body (12) as contained in the case (70) in a recessed part of a press (62) (Step S303), pouring a molten metal (86) of a metal (14) in the case (70) (Step S304), and inserting a punch (84) into the recessed part so as to press down the molten metal (86) in the case (70) for press-fitting (Step S305), whereby the molten metal (86) of the metal (14) is soaked in open porous parts of the porous sintered body (12) by the pressing of the punch (84).

[続表有]

WO 01/48816 A1



(57) 要約:

ケース(70)内にグラファイトを入れ、該ケースを炉内に収容する(ステップS301)。炉(60)内を焼成して、グラファイトによる多孔質焼結体(12)を作製する(ステップS302)。その後、炉(60)から多孔質焼結体(12)をケース(70)ごと取り出して、プレス機(62)の凹部内に多孔質焼結体(12)をケース(70)ごと収容する(ステップS303)。次に、ケース(70)内に金属(14)の溶湯(86)を注湯した後(ステップS304)、パンチ(84)を凹部内に挿通し、ケース(70)内の前記溶湯(86)を押し下げ圧入する(ステップS305)。このパンチ(84)の押圧処理によって、金属(14)の溶湯(86)は、多孔質焼結体(12)の開気孔部中に含浸されることとなる。

明 細 書

ヒートシンク材及びその製造方法

5 技術分野

本発明は、例えばＩＣチップから発生する熱を効率よく放熱させるヒートシンクを構成するためのヒートシンク材及びその製造方法に関する。

背景技術

- 10 一般に、ＩＣチップにとって熱は大敵であり、内部温度が最大許容接合温度を超えないようにしなければならない。また、パワートランジスタや半導体整流素子等の半導体装置では、動作面積当たりの消費電力が大きいため、半導体装置のケース（パッケージ）やリードから放出される熱量だけでは、発生熱量を放出しきれず、装置の内部温度が上昇して熱破壊を引き起こすおそれがある。

- 15 この現象は、ＣＰＵを搭載したＩＣチップにおいても同じであり、クロック周波数の向上に伴って動作時の発熱量が多くなり、放熱を考慮した熱設計が重要な事項となってきた。

- 前記熱破壊の防止等を考慮した熱設計においては、ＩＣチップのケース（パッケージ）に放熱面積の大きいヒートシンクを固着することを加味した素子設計や
20 実装設計が行われている。

前記ヒートシンク用の材料としては、一般に、熱伝導度の良好な銅やアルミニウム等の金属材料が使用されている。

- 近時、ＣＰＵやメモリ等のＩＣチップにおいては、低消費電力を目的とした低電力駆動を図りながらも、素子の高集積化と素子形成面積の拡大化に伴ってＩＣ
25 チップ自体が大型化する傾向にある。ＩＣチップが大型化すると、半導体基体（シリコン基板やＧａＡｓ基板）とヒートシンクとの熱膨張の差によって生じる応力が大きくなり、ＩＣチップの剥離現象や機械的破壊が生じるおそれがある。

これを防止するためには、ＩＣチップの低電力駆動の実現とヒートシンク材の

-2-

改善が挙げられる。ICチップの低電力駆動は、現在、電源電圧として、従来から用いられてきたTTLレベル（5V）を脱して、3.3V以下のレベルが実用化されている。

- 一方、ヒートシンクの構成材料としては、単に熱伝導度を考えるのみでなく、
- 5 半導体基体であるシリコンやGaAsと熱膨張率がほぼ一致し、しかも、熱伝導度の高い材料の選定が必要となってきた。

- ヒートシンク材の改善に関しては、多種多様の報告があり、例えば窒化アルミニウム（AlN）を使用した例や、Cu（銅）-W（タングステン）を用いた例などがある。AlNは、熱伝導性と熱膨張性のバランスに優れており、特にSi
- 10 の熱膨張率とほぼ一致することから、半導体基体としてシリコン基板を用いた半導体装置のヒートシンク材として好適である。

また、Cu-Wは、Wの低熱膨張性とCuの高熱伝導性を兼ね備えた複合材料であり、しかも、機械加工が容易であることから、複雑な形状を有するヒートシンクの構成材料として好適である。

- 15 また、他の例としては、SiCを主成分とするセラミック基材に金属Cuを20～40vol%の割合で含有させたもの（従来例1：特開平8-279569号公報参照）や、無機物質からなる粉末焼結多孔質体にCuを5～30wt%含浸させたもの（従来例2：特開昭59-228742号公報参照）などが提案されている。

- 20 前記従来例1に係るヒートシンク材は、SiCと金属Cuの圧粉体を成形してヒートシンクを作製するという粉体成形であるため、熱膨張率と熱伝導率はあくまでも理論的な値であり、実際の電子部品等で求められる熱膨張率と熱伝導率のバランスを得ることができないという問題がある。

- 従来例2は、無機物質からなる粉末焼結多孔質体に含浸されるCuの比率が低
- 25 く、熱伝導度を高める上で限界が生じるおそれがある。

一方、カーボンと金属を組み合わせた複合材料が開発され、実用化されているが、この複合材料は、金属をCuとした場合は、例えば放電加工用の電極として使用され、金属をPbとした場合は、例えば軸受部材として使用されており、ヒ

ートシンク材として用途例が知られていない。

即ち、カーボンと金属を組み合わせた複合材料において、熱伝導率の高いものでも 140 W/mK であり、ICチップのヒートシンク材として必要な 160 W/mK 以上を満足させることができないのが現状である。

5

発明の開示

本発明はこのような課題を考慮してなされたものであり、実際の電子部品（半導体装置を含む）等で求められる熱膨張率と熱伝導率とのバランスに適合した特性を得ることができるヒートシンク材を提供することを目的とする。

- 10 また、本発明の他の目的は、実際の電子部品（半導体装置を含む）等で求められる熱膨張率と熱伝導率とのバランスに適合した特性を有するヒートシンク材を容易に製造することができ、高品質のヒートシンクの生産性を向上させることができるヒートシンク材の製造方法を提供することにある。

- 15 本発明に係るヒートシンク材は、カーボン又はその同素体と、金属とを含み、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が 160 W/mK 以上であることを特徴とする。これにより、セラミック基板や半導体基板（シリコン、GaAs）等と熱膨張率がほぼ一致し、熱伝導性のよいヒートシンク材を得ることができる。

- 20 また、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が 180 W/mK 以上であって、かつ、熱膨張率が $1 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材も得ることができる。

前記同素体としては、グラファイトやダイヤモンドが好ましい。また、カーボン又はその同素体として、熱伝導率が 100 W/mK 以上のものを使用することが好ましい。

- 25 そして、ヒートシンク材は、前記カーボン又はその同素体を焼成してネットワーク化することによって得られる多孔質焼結体に前記金属を含浸することにより構成することができる。

この場合、前記多孔質焼結体の気孔率が $10\text{ vol}\% \sim 50\text{ vol}\%$ であって、

平均気孔径が $0.1\mu\text{m}\sim 200\mu\text{m}$ であることが好ましく、前記カーボン又はその同素体と前記金属との体積率は、前記カーボン又はその同素体が $50\text{vol}\%$ ～ $80\text{vol}\%$ 、金属が $50\text{vol}\%$ ～ $20\text{vol}\%$ の範囲であることが好ましい。

- 5 また、前記カーボン又はその同素体に、該カーボン又はその同素体を焼成した際の閉気孔率を低減させる添加物を添加させることが好ましい。この添加物としては、SiC及び／又はSiを挙げることができる。

- ヒートシンク材は、前記カーボン又はその同素体の粉体に、水又は結合材を混合し、所定圧力下で成形された予備成形体に、前記金属が含浸されて構成されてい
- 10 いてもよい。この場合、粉体の平均粉末粒度が $1\mu\text{m}\sim 2000\mu\text{m}$ であり、前記粉体が最小の長さをとる方向と、最大の長さをとる方向で、その長さの比が $1:5$ 以下であることが好ましい。この場合、強いネットワークはないものの、任意の形状を作ることができる。

- また、前記カーボン又はその同素体と前記金属との体積率が、前記カーボン又はその同素体が $20\text{vol}\%$ ～ $80\text{vol}\%$ 、金属が $80\text{vol}\%$ ～ $20\text{vol}\%$ の範囲であることが好ましい。
- 15

また、ヒートシンク材は、前記金属が溶解した液体状態又は固液共存状態に、前記カーボン又はその同素体の粉体を混合し、鋳造成形されて構成されていてもよい。

- 20 なお、作製されたヒートシンク材の閉気孔率は $12\text{vol}\%$ 以下であることが好ましい。

- 前記金属に、界面の濡れ性改善のための元素が添加されていることが好ましい。この添加元素としては、Te、Bi、Pb、Sn、Se、Li、Sb、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上を採用することができる。特に、Niは、
- 25 カーボンを溶解しやすく含浸しやすいという効果がある。

前記金属に、前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための元素を添加することが好ましい。この添加元素としては、Nb、Cr、Zr、Be、Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を採用することができる。

前記金属に、湯流れ性を向上させるため、固相／液相の温度範囲が30℃以上、望ましくは50℃以上の元素を添加することが好ましい。これにより、含浸の際のばらつきを低減することができるとともに、残留気孔が減少し強度の向上を図ることができる。なお、含浸圧力を上昇させても同様の効果を得ることができる。

- 5 この添加元素としては、Sn、P、Si、Mgから選択された1種以上を採用することができる。また、前記金属に、前記融点を低減させるための元素を添加することが好ましい。この添加元素としては、例えばZnなどがある。

- 前記金属に、熱伝導率を向上させるための元素が添加されていることが好ましい。この場合、前記金属に、前記熱伝導率を向上させるための元素を添加し、熱
- 10 処理、加工及びカーボンとの反応後、偏析等によって得られる合金の熱伝導率が10W/mK以上であるとよい。望ましくは20W/mK以上、さらに望ましくは40W/mK以上、最も望ましくは60W/mK以上であることが好ましい。

- 熱処理による効果は、添加元素の時効や焼鈍、加工の組合わせにより熱伝導率が向上することが知られており、この効果を利用したものである。また、カーボンとの反応により銅、アルミ、銀中の添加元素は減少し、熱伝導率が向上すること
- 15 とも知られている。さらに、含浸金属が凝固する際に偏析等により添加元素が表面などに析出し、全体での熱伝導率が向上することも知られているので、これらの効果も利用することができる。

- 前記ヒートシンク材は、前記カーボン又はその同素体の粉体と前記金属の粉体
- 20 とを混合し、所定圧力下で成形することでも構成することができる。この場合、前記カーボン又はその同素体の粉体と前記金属の粉体の平均粉末粒度が1μm～500μmであることが好ましい。

- 前記ヒートシンク材は、前記カーボン又はその同素体の粉碎裁断材と前記金属の粉体とを混合し、所定温度、所定圧力下で成形することでも構成することが
- 25 できる。

そして、上述のように成形によってヒートシンク材を構成する場合においては、前記カーボン又はその同素体と前記金属との体積率が、前記カーボン又はその同素体が20vol%～60vol%の範囲、金属が80vol%～40vol%

-6-

の範囲であることが好ましい。これにより、熱伝導率が 200 W/mK 以上であって、かつ、熱膨張率が $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 14 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材を得ることができる。

5 この場合、前記カーボン又はその同素体に、成形後の再焼成を可能とする添加物を添加させることが好ましい。この添加物としては、SiC及び/又はSiを挙げることができる。

前記金属に、界面の濡れ性改善のための低融点金属が添加されていることが好ましい。この低融点金属としては、Te、Bi、Pb、Sn、Se、Li、Sb、Se、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上を採用することができる。

10 前記金属に、前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための元素が添加されていることが好ましい。この添加元素としては、Nb、Cr、Zr、Be、Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を採用することができる。

15 前記金属に、湯流れ性を向上させるため、固相/液相の温度範囲が 30°C 以上の元素、望ましくは 50°C 以上の元素を添加することが好ましい。これにより、含浸の際のばらつきを低減することができるとともに、残留気孔が減少し強度の向上を図ることができる。なお、含浸圧力を上昇させても同様の効果を得ることができる。この添加元素としては、Sn、P、Si、Mgから選択された1種以上を採用することができる。また、前記金属に、前記融点を低減させるための元素を添加することが好ましい。この添加元素としては、例えばZnなどがある。

そして、少なくとも前記カーボン又はその同素体と添加元素との反応によって、前記カーボン又はその同素体の表面にカーバイド層が形成されていてもよい。この場合、前記添加元素としては、Ti、W、Mo、Nb、Cr、Zr、Be、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を採用することができる。

25 また、前記カーボン又はその同素体と組み合わせられる前記金属としては、導電率の高い金属であるCu、Al、Agから選択された少なくとも1種を採用することができる。

また、本発明は、最小の熱伝導率をとる方向と、最大の熱伝導率をとる方向で、

-7-

熱伝導率の比が1 : 5以下である。これにより、熱伝導率がほとんど等方性に近い特性を有するため、熱の拡散が良好でありヒートシンクとして使用する場合に好適である。また、設置方向をいちいち考慮する必要がなく、実装面で有利となる。

- 5 次に、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体を焼成してネットワーク化することによって多孔質焼結体を作製する焼成工程と、金属を前記多孔質焼結体中に含浸させる含浸工程と、少なくとも前記金属が含浸された前記多孔質焼結体を冷却する冷却工程とを有することを特徴とする。

- 10 これにより、セラミック基板や半導体基板（シリコン、GaAs）等と熱膨張率がほぼ一致し、熱伝導性のよいヒートシンク材を容易に製造することができ、高品質のヒートシンクの生産性を向上させることができる。

そして、前記焼成工程は、容器内に前記カーボン又はその同素体を入れ、該容器内を加熱することにより、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体を作製するようにしてもよい。

- 15 また、前記含浸工程は、容器内に入れられた前記金属の溶湯に前記多孔質焼結体を浸漬し、前記容器内に含浸用ガスを導入して前記容器内を加圧することにより、前記溶湯を多孔質焼結体中に含浸させるようにしてもよい。この場合、前記加圧力としては、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体の圧縮強度の4～5倍以下であること、あるいは1.01～202MPa（10～2000気
- 20 圧）であることが好ましい。この場合の冷却工程として、前記容器内の前記含浸用ガスを抜き、速やかに冷却用ガスを導入して前記容器内を冷却するようにしてもよい。

- 他の製造方法としては、次の方法が挙げられる。即ち、前記焼成工程として、ケース内に前記カーボン又はその同素体を収容する工程と、前記ケース内を予熱
- 25 して、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体を作製する工程とを有し、前記含浸工程として、プレス機の金型に前記ケースを収容する工程と、前記ケース内に前記金属の溶湯を注湯する工程と、前記プレス機のパンチで前記溶湯を押し下げ圧入して前記ケース内の前記多孔質焼結体中に前記溶湯を含浸させる工程

とを有することである。

- この場合、前記パンチによる圧入時の圧力を、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体の圧縮強度の4～5倍以下であること、あるいは1.01～202MPa（10～2000気圧）とすることが好ましい。また、前記金型として、前記多孔質焼結体に残存するガスを抜くためのガス抜き孔、又は、ガスを抜くための隙間部が形成された金型を用いることが好ましい。

また、前記冷却工程は、前記多孔質焼結体に前記金属が含浸された前記ヒートシンク材を、冷却ガスの吹き付けもしくは冷却水が供給されている冷却ゾーン又は冷却用金型で冷却するようにしてもよい。

- 10 本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体の粉体に、水又は結合材を混合する工程と、前記混合物を所定圧力下で予備成形体を成形する工程と、金属を前記予備成形体中に含浸させる含浸工程とを有することを特徴とする。

- 15 また、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、金属が溶解した液体状態又は固液共存状態に、カーボン又はその同素体の粉体を混合する工程と、前記混合物を鑄造成形する工程とを有することを特徴とする。

- また、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体の粉体と金属の粉体とを混合する混合工程と、前記混合物をホットプレス機の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とする。

- 20 また、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体の粉体と金属の粉体とを混合する混合工程と、前記混合物を予備成形して予備成形体とする予備成形工程と、前記予備成形体をホットプレス機の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とする。

- 25 また、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体の粉砕裁断材料と金属の粉体とを混合し、予備成形して混合物を作製する混合工程と、前記混合物をホットプレス機の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形

してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とする。

また、本発明に係るヒートシンク材の製造方法は、カーボン又はその同素体の
粉砕裁断材料と金属の粉体とを混合する混合工程と、前記混合物を予備成形して
予備成形体とする予備成形工程と、前記予備成形体をホットプレス機の金型内に
5 入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを
有することを特徴とする。

これらの製造方法において、前記所定温度は、前記金属における融点の -10°C ～ -50°C が好ましく、前記所定圧力は、 $10.13\sim 101.32\text{MPa}$
($100\sim 1000$ 気圧)が好ましい。

- 10 また、これらの製造方法において、加圧工程後に、前記ヒートシンク材を前記
金属における融点以上まで加熱するようにしてもよい。

さらに、前記金属は、Cu、Al、Agから選択された少なくとも1種であっ
てもよい。

15 図面の簡単な説明

図1は、第1の実施の形態に係るヒートシンク材の構成を示す斜視図である。

図2Aは、第1の製造方法で使用される高压容器の正面を一部破断して示す図
である。

図2Bは、前記高压容器の側面を一部破断して示す図である。

- 20 図3は、第1の製造方法を示す工程ブロック図である。

図4は、第1の製造方法の第1の変形例を示す工程ブロック図である。

図5は、第1の製造方法の第2の変形例を示す工程ブロック図である。

図6は、第2の製造方法で使用される炉を示す構成図である。

図7は、第2の製造方法で使用されるプレス機を示す構成図である。

- 25 図8は、第2の製造方法を示す工程ブロック図である。

図9は、第2の実施の形態に係るヒートシンク材の構成を示す斜視図である。

図10は、第3の製造方法で使用される予備成形機を示す構成図である。

図11は、第3の製造方法で使用されるホットプレス機を示す構成図である。

- 図12は、第3の製造方法を示す工程ブロック図である。
- 図13は、第4の製造方法を示す工程ブロック図である。
- 図14は、第4の製造方法で使用するホットプレス機を示す構成図である。
- 図15は、第3の実施の形態に係るヒートシンク材の構成を示す斜視図である。
- 5 図16は、第5の製造方法を示す工程ブロック図である。
- 図17は、第5の製造方法に係るヒートシンク材の特性を示す図表である。
- 図18は、第6の製造方法を示す工程ブロック図である。
- 図19は、カーボンPにおける実験例の結果を示す図表である。
- 図20は、カーボンMにおける実験例の結果を示す図表である。
- 10 図21は、カーボンNにおける実験例の結果を示す図表である。
- 図22は、カーボンP、M、Nの特性を示す図表である。
- 図23は、実験結果のうち、金型プレスによる場合とガス加圧による場合の各代表例を抽出して示す図表である。
- 図24は、含浸圧力に対する気孔率及び密度の変化を示す特性図である。
- 15 図25は、各ロットの測定密度と密度平均との関係を示す特性図である。
- 図26は、含浸圧力に対する熱伝導率の変化を示す特性図である。
- 図27は、含浸圧力に対する圧縮強度の変化を示す特性図である。
- 図28は、含浸圧力に対する密度の変化を示す特性図である。
- 図29は、含浸圧力に対する熱伝導率の変化を示す特性図である。
- 20 図30は、SiCの気孔率、気孔径、Niめっきの有無、Si含浸の有無、含浸温度、加圧力、加圧時間、冷却速度を適宜変えたときのSiC/Cuの反応状況とCuの含浸状況の違いを示す表図である。
- 図31は、含浸圧力に対する残留気孔の変化を示す特性図である。
- 図32は、添加元素に対する残留気孔の変化を示す特性図である。
- 25 図33は、第7の製造方法に使用されるホットプレス機を示す概略構成図である。
- 図34は、第7の製造方法を示す工程ブロック図である。
- 図35Aは、パッキン部材を示す平面図である。

図35Bは、図35AにおけるXXIVB-XXIVB線上の断面図である。

図36は、第7の製造方法に使用されるホットプレス機の他の例を示す概略構成図である。

図37は、第7の製造方法の変形例に使用されるホットプレス機を示す概略構成図である。

図38は、第7の製造方法の変形例を示す工程ブロック図である。

図39は、第8の製造方法に使用されるホットプレス機を示す概略構成図である。

図40は、第8の製造方法を示す工程ブロック図である。

10

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係るヒートシンク材及びその製造方法の実施の形態例を図1～図40を参照しながら説明する。

第1の実施の形態に係るヒートシンク材10Aは、図1に示すように、カーボン又はその同素体を焼成してネットワーク化することによって得られる多孔質焼結体12に金属14が含浸されて構成されている。

この場合、前記カーボン又はその同素体として、熱伝導率が100W/mK以上、望ましくは150W/mK以上（気孔がない状態での推定値）、さらに望ましくは200W/mK以上（気孔がない状態での推定値）のものを使用することが好ましい。

20

本例では、熱伝導率が100W/mK以上のグラファイトで構成された多孔質焼結体12の開気孔部に銅を含浸させたヒートシンク材を示す。含浸する金属14としては、銅のほかに、アルミニウムや銀を使用することができる。

また、多孔質焼結体12と金属14との体積率は、多孔質焼結体12が50vol%～80vol%、金属14が50vol%～20vol%の範囲としている。これにより、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が180～220W/mK以上であって、かつ、熱膨張率が $1 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材を得ることができる。

25

前記多孔質焼結体12の気孔率としては、10vol%～50vol%であることが望ましい。気孔率が10vol%以下では、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の180W/mK（室温）の熱伝導率を得ることができず、50vol%を超えると多孔質焼結体12の強度が低下し、熱膨張率を $15.0 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下に抑えることができないからである。

前記多孔質焼結体12の平均開気孔径（気孔径）の値としては、0.1～200 μm が望ましい。前記気孔径が0.1 μm 未満であると、開気孔内に金属14を含浸することが困難になり、熱伝導率が低下する。一方、前記気孔径が200 μm を超えると、多孔質焼結体12の強度が低下し、熱膨張率を低く抑えることができない。

前記多孔質焼結体12の平均開気孔に関する分布（気孔分布）としては、0.5～50 μm に90vol%以上分布することが好ましい。0.5～50 μm の気孔が90vol%以上分布していない場合は、金属14が含浸していない開気孔が増え、熱伝導率が低下する可能性がある。

また、多孔質焼結体12に金属14を含浸して得たヒートシンク材10Aの閉気孔率としては、12vol%以下であることが好ましい。5vol%を超えると、熱伝導率が低下する可能性があるからである。

なお、前記気孔率、気孔径及び気孔分布の測定には、株式会社島津製作所製の自動ポロシメータ（商品名「オートポア9200」）を使用した。

この第1の実施の形態に係るヒートシンク材10Aにおいて、前記グラファイトに、該グラファイトを焼成した際の閉気孔率を低減させる添加物を添加させることが好ましい。この添加物としては、SiC及び/又はSiを挙げることができる。これにより、焼成時の閉気孔（クローズドポア）を減少させることができ、多孔質焼結体12に対する金属14の含浸率を向上させることができる。

また、グラファイト中に、該グラファイトと反応する元素を添加するようにしてもよい。この添加元素としては、Ti、W、Mo、Nb、Cr、Zr、Be、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を挙げることができる。これにより、グラファイトの焼成時に、該グラファイトの表面（開気孔の表面を含む）に反応

層（カーバイド層）が形成され、グラファイトの開気孔に含浸される金属14との濡れ性が改善し、低圧での含浸が可能になり、しかも、微細開気孔への含浸も可能になる。

一方、多孔質焼結体12に含浸される金属14に、Te、Bi、Pb、Sn、
5 Se、Li、Sb、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上を添加することが好ましい。これにより、多孔質焼結体12と金属14との界面の濡れ性が改善され、多孔質焼結体12の開気孔内に金属14が入り易くなる。特に、Niは、カーボンを溶解しやすく含浸しやすいという効果がある。

また、多孔質焼結体12に含浸される金属14に、Nb、Cr、Zr、Be、
10 Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を添加することが好ましい。これにより、グラファイトと金属との反応性が向上し、開気孔内においてグラファイトと金属とが密着し易くなり、閉気孔の発生を抑制することができる。

また、多孔質焼結体12に含浸される金属14に、湯流れ性を向上させるとともに残留気孔が減少するため、固相／液相の温度範囲が30℃以上、望ましくは
15 50℃以上の元素、例えばSn、P、Si、Mgから選択された1種以上を添加することが好ましい。これにより、含浸の際のばらつきを低減することができるとともに、残留気孔が減少し強度の向上を図ることができる。なお、含浸圧力を上昇させても同様の効果を得ることができる。また、前記金属14に、融点を低減させるための元素を添加することが好ましい。この添加元素としては、例えば
20 Znなどがある。

次に、この第1の実施の形態に係るヒートシンク材10Aを製造するためのいくつかの方法を図2A～図8を参照しながら説明する。

第1の実施の形態に係るヒートシンク材10Aを製造するための第1及び第2の製造方法は共に、グラファイトを焼成してネットワーク化することによって多
25 孔質焼結体12を作製する焼成工程と、金属14を前記多孔質焼結体12中に含浸させる含浸工程とを有する。

そして、第1の製造方法は、具体的には図2A及び図2Bにその一例を示すように、高圧容器30を使用することによって行われる。この高圧容器30は、角

筒状の筐体 3 2 における両側板 3 4 及び 3 6 のほぼ中央部分にそれぞれ回転軸 3 8 が設けられて、該回転軸 3 8 を中心として筐体 3 2 自体が回転できるようになっている。

5 筐体 3 2 内には、耐火容器 4 0 と該耐火容器 4 0 を加熱するためのヒータ 4 2 が設けられている。耐火容器 4 0 は、中空部 4 4 を有する角筒状の形状を有し、1 つの側面における高さ方向中央部分に中空部 4 4 に連通する開口 4 6 が設けられている。中空部 4 4 のうち、開口 4 6 を中心として一方の中空部（以下、第 1 室 4 4 a と記す）には、含浸材料である金属 1 4 の塊、あるいは金属 1 4 の熔融金属が収容されるようになっている。

10 他方の中空部（以下、第 2 室 4 4 b と記す）は、被含浸試料である多孔質焼結体 1 2 が複数取り付けられるようになっており、第 2 室 4 4 b が上方に位置しても、多孔質焼結体 1 2 が落下しないように多孔質焼結体 1 2 の支持機構が設けられている。なお、ヒータ 4 2 は、3 0 0 M P a の高圧力下でも破壊されない構造とされている。

15 また、前記高圧容器 3 0 には、真空引きのための吸気管 4 8 と、高圧力付与のためのガス及び冷却用ガスの導入管 5 0 及び導出管 5 2 が設けられている。

次に、前記高圧容器 3 0 を用いた第 1 の製造方法について図 3 を参照しながら説明する。

まず、ステップ S 1 において、グラファイトを棒状に成形する工程、ピッチ
20 （コールタール的一种）を含浸させる工程及び加熱焼成する工程を経てグラファイトによる多孔質焼結体 1 2 を作製する。

グラファイトを棒状に成形するには、グラファイト粉体にピッチを混合して、1 5 0 ° C 程度の雰囲気中で押しだし成形を行って棒状（φ 1 0 0 ~ φ 6 0 0、長さ 3 0 0 0 m m 程度）のグラファイトを得る。このままの状態のグラファイトは、
25 気孔が多くしかも熱伝導率が低い。

次に、グラファイトの気孔を減少させるために真空脱気を行い、その真空中でピッチを含浸させる。そして、1 0 0 0 ° C 程度で焼成しさらにピッチを含浸する工程を 3 回程度繰り返す。

そして、熱伝導率を向上させるために3000℃程度の炉の中でグラファイトを加熱焼成する。このとき、グラファイトが燃焼することを防止するために炉をカーボン粉末でカバーするとともに、グラファイト自身もカーボン粉末でカバーしておく。また、このグラファイトを加熱する工程は、グラファイトに直接通電することにより加熱焼成してもよい。

このようにすることで、多孔質焼結体12が得られるが、最終製品の形状によってはさらに予備加工をしておくことが望ましい。

その後、ステップS2において、高圧容器30を初期状態にして、高圧容器30内に設けられている耐火容器40の第1室44aを下方に位置させる。

- 10 その後、多孔質焼結体12と金属14の塊を高圧容器30の耐火容器40内に入れ、金属14の塊を耐火容器40の第1室44a内に配置し、多孔質焼結体12を第2室44bにセットする（ステップS3）。このとき予め多孔質焼結体12を予熱しておくことが好ましい。予熱を行うには、多孔質焼結体12をカーボンケースに収納するか又は断熱材にて覆った状態で予熱を行い、所定の温度に達したらケースに収納するか又は断熱材にて覆った状態のままで上記のとおり第2室44bにセットする。

その後、高圧容器30（及び耐火容器40）を密封した後、吸気管48を通じて高圧容器30内の真空引きを行って該高圧容器30内を負圧状態にする（ステップS4）。

- 20 その後、ヒータ42に通電して第1室44aの金属14を加熱溶解する（ステップS5）。以下の説明では、加熱溶解された金属14を便宜的に「熔融金属14」とも記す。

- 25 その後、第1室44a内の熔融金属14が所定温度に達した段階で、高圧容器30を180度転回させる（ステップS6）。この転回動作によって、第1室44aが上方に位置することから、第1室44a内の熔融金属14は、自重によって下方に位置する第2室44b内に落下し、この段階で、熔融金属14に多孔質焼結体12が浸された状態となる。

その後、ガス導入管50を通じて高圧容器30内に含浸用ガスを導入して、該

高压容器 30 内を加圧する（ステップ S 7）。この加圧処理によって、前記熔融金属 14 は多孔質焼結体 12 の開気孔部中に含浸することとなる。

この含浸工程が終了した時点で直ちに冷却工程に移行する。この冷却工程は、まず、前記高压容器 30 を再び 180 度転回させる（ステップ S 8）。この転回動作によって、第 1 室 44 a が下方に位置することから、第 2 室 44 b 内の熔融金属 14 は、再び第 1 室 44 a 内に落下することになる。

前記ステップ S 7 での加圧処理（含浸処理）によって、熔融金属 14 の一部が多孔質焼結体 12 の開気孔中に含浸されていることから、下方に位置する第 1 室 44 a に落下する熔融金属 14 は多孔質焼結体 12 に含浸されなかった残存熔融金属である。残存熔融金属が第 1 室 44 a 内に落下した段階で、第 2 室 44 b には熔融金属 14 が含浸された多孔質焼結体 12 が残ることとなる。

その後、ガス導出管 52 を通じて高压容器 30 内の含浸用ガスを排気すると同時に、ガス導入管 50 を通じて冷却用ガスを高压容器 30 内に導入する（ステップ S 9）。この含浸用ガスの排気と冷却用ガスの導入によって、冷却用ガスが高压容器 30 内を満遍なく循環し、高压容器 30 は急速に冷却される。この速やかな冷却によって、前記多孔質焼結体 12 に含浸された熔融金属 14 が、急速に金属 14 の塊に固化して体積が膨張することから、含浸された金属 14 は多孔質焼結体 12 に強固に保持される。

他の冷却工程としては、図 3 において一点鎖線の枠内に示すように、前記ステップ S 8 での処理が終了した段階で、高压容器 30、あるいは熔融金属 14 が含浸された多孔質焼結体 12 を冷却ゾーンに搬送し、冷却ゾーンに設置されている冷やし金に接触させる方法がある（ステップ S 10 参照）。

この冷やし金への接触によって多孔質焼結体 12 は急速に冷却されることとなる。この冷却過程においては、多孔質焼結体 12 に冷却ガスを吹き付けたり、冷やし金を水冷しながら行うようにしてもよく、特に、押湯効果を考えて冷却した方が好ましい。

このように、第 1 の製造方法の各工程を踏むことにより、グラファイトによる多孔質焼結体 12 への金属 14 の含浸処理を容易に行うことができ、しかも、多

孔質焼結体12への金属14の含浸率を向上させることができ、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が $180 \sim 220 \text{ W/mK}$ 以上であつて、かつ、熱膨張率が $1 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C} \sim 10 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ であるヒートシンク材10Aを容易に得ることができる。

- 5 ただし、後述する多孔質焼結体にSiCを採用する場合は、室温から 200°C までの平均熱膨張率が $4.0 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C} \sim 9.0 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ で、かつ直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が 160 W/mK （室温）以上、好ましくは 180 W/mK 以上であるヒートシンク材を得ることができる。

- 10 前記ステップS5において、ヒータ42に通電して第1室44aの金属14を加熱溶解する場合に、ステップS6に移行する所定温度（加熱温度）は、金属14の融点より $30^\circ\text{C} \sim 250^\circ\text{C}$ 高い温度がよく、好ましくは前記融点より $50^\circ\text{C} \sim 200^\circ\text{C}$ 高い温度が望ましい。この場合、高压容器30内を $1 \times 10^{-3} \text{ Torr}$ 以下の真空中にしておくことが好ましい。

- 15 また、前記ステップS7において、高压容器30内に含浸用ガスを導入することによって高压容器30に付与する圧力としては、 0.98 MPa 以上、 202 MPa 以下とする。この場合、 4.9 MPa 以上、 202 MPa 以下が好ましく、より好ましくは 9.8 MPa 以上、 202 MP 以下であるとよい。

- 20 この圧力は、高压である方が含浸率の向上、冷却能力の向上の観点から好ましい。しかし、圧力が高すぎるとグラファイトの破損を生じやすくなり、また、高压に耐えうる設備のコストが高くなるので、これらの要素を勘案して圧力を選択する。

また、高压容器30への圧力の付与時間は1秒以上、60秒以下がよく、望ましくは1秒以上、30秒以下が好ましい。

- 25 なお、多孔質焼結体20の気孔としては、上述したように、平均直径が $0.5 \mu\text{m} \sim 50 \mu\text{m}$ のものが90vol%以上存在し、かつ、気孔率が10vol% $\sim 50 \text{ vol}\%$ であることが望ましい。

ただし、後述する多孔質焼結体にSiCを採用する場合は、平均直径が $5 \mu\text{m} \sim 50 \mu\text{m}$ のものが90%以上存在し、かつ、気孔率が20vol% $\sim 70 \text{ vol}\%$

1%であることが望ましい。

一方、冷却工程における冷却速度は、含浸時の温度から800℃までの期間において、-400℃/時間以上とすることが好ましく、より好ましくは-800℃/時間以上が望ましい。

- 5 前記ステップS7において、高压容器30に付与する圧力は、多孔質焼結体12の開気孔部に金属14を完全に含浸させるために必要な圧力である。この場合、多孔質焼結体12に金属14が含浸されていない開気孔が残存すると、熱伝導性を著しく阻害するため、高い圧力を付与することが必要となる。

- この圧力はその概略をワッシュバーン (Washburn) の式によって推定できる
10 が、気孔径が小さいほど大きな力を必要とする。この式に従えば、0.1μmφのとき39.2MPa、1.0μmφのとき3.92MPa、10μmφのとき0.392MPaの圧力が適当である。しかしながら、実際は平均気孔径が0.1μmφの材料は0.01μmφ以下の気孔も存在する(図31及び図32参照)のためにより大きい圧力が必要になる。具体的には0.01μmφには392
15 MPaが必要である。

なお、グラファイトへの添加元素や金属への添加元素の好ましい例については、すでに述べたのでここではその説明を省略する。

次に、第1の製造方法のいくつかの変形例を図4及び図5を参照しながら説明する。

- 20 第1の変形例は、図4に示すように、まず、グラファイトを焼成して、グラファイトによる多孔質焼結体12を作製する(ステップS101)。高压容器30を初期状態にして、高压容器30内に設けられている耐火容器40の第1室44aを下方に位置させる(ステップS102)。

- その後、多孔質焼結体12を第2室44bにセットし、予め熔融された金属
25 (熔融金属)14を第1室44a内に流し込む(ステップS103)。

その後、第1室44a内の熔融金属14が所定温度に達した段階で、高压容器30を180度転回させる(ステップS104)。この転回動作によって、第1室44a内の熔融金属14が下方に位置する第2室44bに落下し、この段階で、

熔融金属14に多孔質焼結体12が含浸された状態となる。

その後、ガス導入管50を通じて高圧容器30内に含浸用ガスを導入して、該高圧容器30内を加圧する（ステップS105）。この加圧処理によって、前記熔融金属14は多孔質焼結体12の開気孔部中に含浸することとなる。

- 5 次に、第2の変形例について図5を参照しながら説明する。この第2の変形例に係る含浸工程は、高圧容器30内に設置されている耐火容器40の内部中央部分に、多孔質セラミック材からなる仕切板（図示せず）が設けられた高圧容器30を用いる。耐火容器40内は、前記仕切板によって第1室44aと第2室44bとに仕切られることになる。

- 10 前記仕切板としては、気孔率が40vol%～90vol%で、かつ気孔径が0.5mm～3.0mmである多孔質セラミック材を用いることが望ましく、より好ましくは気孔率が70vol%～85vol%であり、かつ気孔径が1.0mm～2.0mmである多孔質セラミック材を用いることが望ましい。

- 15 そして、この第2の変形例では、図5に示すように、まず、グラファイトを焼成して、グラファイトによる多孔質焼結体12を作製する（ステップS201）。高圧容器30を初期状態にして、高圧容器30内に設けられている耐火容器40の第1室44aを下方に、第2室44bを上方に位置させる（ステップS202）。

- 20 その後、多孔質焼結体12と金属14の塊を高圧容器30の耐火容器40内に入れ、金属14の塊を上方に位置する第2室44b内に配置し、多孔質焼結体12を下方に位置する第1室44aにセットする（ステップS203）。

その後、高圧容器30（及び耐火容器40）を密封した後、吸気管48を通じて高圧容器30内の真空引きを行って該高圧容器30内を負圧状態にする（ステップS204）。

- 25 その後、ヒータ42に通電して第2室44bの金属14を加熱溶解する（ステップS205）。前記熔融金属14が所定温度に達した段階で、ガス導入管50を通じて高圧容器30内に含浸用ガスを導入して、該高圧容器30内を加圧する（ステップS206）。この加圧処理によって、上方に位置する第2室44b内

の熔融金属 14 は、仕切板を通過し、下方に位置する第 1 室 44 a 内の多孔質焼結体 12 の開気孔部中に含浸されることになる。

次に、第 2 の製造方法について図 6～図 8 を参照しながら説明する。この第 2 の製造方法では、図 6 に示すように、グラファイトを焼成して多孔質焼結体 12
5 を作製するための炉 60 と、図 7 に示すように、多孔質焼結体 12 に金属 14 を含浸させるためのプレス機 62 が使用される。

炉 60 は、図 6 に示すように、一般にはグラファイトを黒鉛化するために用いられるものであり、その内部にケース 70 が収容可能な空間 72 と、該空間 72
10 内に収容されたケース 70 を加熱するためのヒータ 74 が設けられている。ケース 70 はグラファイト、セラミックス、セラペーパー（アルミナ等のセラミックスから構成される断熱材）等の材料から構成される。そして、このケース 70 には、グラファイトが収容される。

プレス機 62 は、図 7 に示すように、上部開口の凹部 80 を有する金型 82 と、凹部 80 内に挿通可能とされ、かつ、凹部 80 内の内容物を押し下げ圧入するパ
15 ンチ 84 とを有する。

次に、前記炉 60 とプレス機 62 を用いた第 2 の製造方法について図 8 を参照しながら説明する。

まず、ケース 70 内にグラファイトを入れ、該ケース 70 を炉 60 内に収容する（ステップ S 301）。炉 60 内の雰囲気加熱して、グラファイトを焼成し
20 多孔質焼結体 12 を作製する（ステップ S 302）。

また、この工程においては、グラファイトに対して電流を通電することにより 3000℃程度まで加熱して、多孔質焼結体 12 を作製するようにしてもよい。

その後、炉 60 から多孔質焼結体 12 をケース 70 ごと取り出して、プレス機 62 の凹部 80 内に多孔質焼結体 12 をケース 70 ごと収容する（ステップ S
25 303）。

次に、ケース 70 内に金属 14 の溶湯 86 を注湯した後（ステップ S 304）、パンチ 84 を凹部 80 内に挿通し、ケース 70 内の前記溶湯 86 を押し下げ圧入する（ステップ S 305）。このパンチ 84 の押圧処理によって、金属 14 の溶

湯 8 6 は、多孔質焼結体 1 2 の開気孔部中に含浸することとなる。

上述の第 2 の製造方法において、前記パンチ 8 4 による圧入時の圧力を 1. 0
1 ~ 2 0 2 M P a (1 0 ~ 2 0 0 0 気圧) とすることが好ましい。また、図 7 に
示すように、ケース 7 0 の底部や金型 8 2 の底部に、多孔質焼結体 1 2 に残存す
5 るガスを抜くためのガス抜き孔 8 8 及び 9 0 やガスを抜くための隙間部を形成す
るようにしてもよい。この場合、パンチ 8 4 の圧入時に、多孔質焼結体 1 2 に残
存するガスがガス抜き孔 8 8 及び 9 0 を通して抜けるため、開気孔への溶湯 8 6
の含浸がスムーズに行われることになる。

このように、第 2 の製造方法の各工程を踏むことにより、グラファイトによる
10 多孔質焼結体 1 2 への金属 1 4 の含浸処理を容易に行うことができ、しかも、多
孔質焼結体 1 2 への金属 1 4 の含浸率を向上させることができ、直交する 3 軸方
向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が 1 8 0 ~ 2 2 0 W / m K 以上であっ
て、かつ、熱膨張率が $1 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C} \sim 10 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ であるヒートシンク
材 1 0 A を容易に得ることができる。

15 上述の炉 6 0 の代わりに、予熱を利用する炉を使用してもよい。この場合、予
め圧粉した材料またはグラファイトによる多孔質焼結体 1 2 を予熱する。この処
理によってネットワーク化しているグラファイト (又は後述の S i C) に対して
金属 1 4 が含浸しやすくなる。予熱の温度は、溶湯 8 6 と同程度の温度まで予熱
することが望ましい。具体的には、溶湯 8 6 が 1 2 0 0 $^\circ\text{C}$ 程度であるならば、グ
20 ラファイトの予熱温度は 1 0 0 0 $^\circ\text{C} \sim 1 4 0 0 $^\circ\text{C}$ が望ましい。$

次に、第 2 の実施の形態に係るヒートシンク材 1 0 B について図 9 を参照しな
がら説明する。

第 2 の実施の形態に係るヒートシンク材 1 0 B は、図 9 に示すように、カーボ
ン又はその同素体の粉体 1 2 a と金属 1 4 の粉体 1 4 a とを混合し、所定温度、
25 所定圧力下で成形されて構成されている。

前記カーボン又はその同素体としては、熱伝導率が 1 0 0 W / m K 以上、望ま
しくは 1 5 0 W / m K 以上 (気孔がない状態での推定値)、さらに望ましくは 2
0 0 W / m K 以上 (気孔がない状態での推定値) のものを使用することが好まし

い。特に、この第2の実施の形態では、グラファイトのほかに、ダイヤモンドを使用することができる。本例では、熱伝導率が 100 W/mK 以上のグラファイトの粉体と銅の粉体を混合し、成形して構成されたヒートシンク材10Bを示す。前記金属14としては、銅のほかに、アルミニウムや銀を使用することができる。

- 5 また、この第2の実施の形態に係るヒートシンク材10Bは、前記カーボン又はその同素体の粉碎裁断材（例えば炭素繊維の粉碎裁断材）と前記金属14の粉体14aとを混合し、所定温度、所定圧力下で成形して構成することもできる。

そして、前記所定温度としては、プレス型内での成形を考慮すると、前記金属14における融点の $-10^{\circ}\text{C}\sim-50^{\circ}\text{C}$ が好ましく、前記所定圧力としては、
10 $0.13\sim101.32\text{ MPa}$ （ $100\sim1000$ 気圧）が好ましい。

また、前記カーボン又はその同素体の粉体12aと、金属14の粉体14aの平均粉末粒度は、 $1\mu\text{m}\sim500\mu\text{m}$ であることが好ましい。カーボン又はその同素体と金属14との体積率は、カーボン又はその同素体が $20\text{ vol}\%\sim60\text{ vol}\%$ 、金属14が $80\text{ vol}\%\sim40\text{ vol}\%$ の範囲としている。これにより、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が $200\sim350\text{ W/mK}$ 以上であって、かつ、熱膨張率が $3\times10^{-6}/^{\circ}\text{C}\sim14\times10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材10Bを得ることができる。

この第2の実施の形態に係るヒートシンク材10Bにおいて、カーボン又はその同素体に、成形後の再焼成を可能とする添加物を添加させることが好ましい。
20 この添加物としては、SiC及び／又はSiを挙げることができる。これにより、成形後において、前記金属14の融点以上の温度での再焼成が可能となる。この場合、成形後に生じた粒同士が前記再焼成によって結合することになるため、熱伝導を阻害する粒界をほとんどなくすことができ、ヒートシンク材10Bの熱伝導率の向上を図ることができる。

25 また、カーボン又はその同素体中に、該カーボン又はその同素体と反応する元素を添加するようにしてもよい。この添加元素としては、Ti、W、Mo、Nb、Cr、Zr、Be、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を挙げることができる。これにより、成形時や再焼成時に、カーボン又はその同素体の表面に反

応層（カーバイド層）が形成され、ヒートシンク材10Bの表面における粒同士の結合を向上させることができる。

一方、前記金属14には、低融点金属、例えばTe、Bi、Pb、Sn、Se、Li、Sb、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上を添加することが
5 好ましい。これにより、カーボン又はその同素体と金属14との界面の濡れ性が改善され、熱伝導を阻害する粒界の発生を抑えることができる。なお、熱伝導の観点から、前記低融点金属は前記金属14に固溶しないことが好ましい。

また、前記金属14に、Nb、Cr、Zr、Be、Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上を添加することが好ましい。これにより、カーボン又は
10 その同素体と金属14との反応性が向上し、この場合も、成形時における粒界の発生を抑えることができる。

また、前記金属14に、湯流れ性を向上させるとともに残留気孔を減少させるため、固相／液相の温度範囲が30℃以上、望ましくは50℃以上の元素、例えばSn、P、Si、Mgから選択された1種以上を添加することが好ましい。こ
15 れにより、含浸の際のばらつきを低減することができるとともに、残留気孔が減少し強度の向上を図ることができる。なお、含浸圧力を上昇させても同様の効果を得ることができる。

また、前記金属14に、融点を低減させるための元素を添加することが好ましい。この添加元素としては、例えばZnなどがある。

20 次に、この第2の実施の形態に係るヒートシンク材10Bを製造するためのいくつかの方法（第3及び第4の製造方法）を図10～図14を参照しながら説明する。

まず、第3の製造方法は、具体的には図10及び図11にその一例を示すように、予備成形機100（図10参照）と、ホットプレス機102（図11参照）
25 を使用することによって行われる。

予備成形機100は、図10に示すように、上部開口の凹部110を有する金型112と、凹部110内に挿通可能とされ、かつ、凹部110内の内容物を押し下げ圧入するパンチ114とを有する。ケース70には、カーボン又はその同

-24-

素体の粉体 12a と金属 14 の粉体 14a とを混合したもの、即ち、混合物 104 が収容される。

5 ホットプレス機 102 は、図 11 に示すように、筒状の筐体 120 内に、基台を兼ねる下パンチ 122 と、該下パンチ 122 上に固定された上面開口の黒鉛製の耐火容器 124 と、該耐火容器 124 内に上方から進退自在とされた上パンチ 126 と、前記耐火容器 124 を加熱するためのヒータ 128 が設けられている。耐火容器 124 には、前記予備成形機 100 で成形された混合物 104 の予備成形体 106 が収容される。なお、このホットプレス機 102 には、真空引きのための吸気管 130 が設けられている。

10 下パンチ 122 の内部には、耐火容器 124 内を加熱するための加熱用流体や耐火容器 124 内を冷却するための冷却用流体を流通させる通路 132 が設けられている。

そして、第 3 の製造方法は、図 12 に示す工程を踏むことにより行われる。まず、ケース 70 内にカーボン又はその同素体の粉体 12a と金属 14 の粉体 14a とを入れて混合して混合物 104 を得た後（ステップ S401）、該混合物 104 が入ったケース 70 を予備成形機 100 における金型 112 の凹部 110 内に収容する（ステップ S402）。その後、パンチ 114 を凹部 110 内に圧入して混合物 104 を予備成形して予備成形体 106 を成形する（ステップ S403）。

20 次に、金型 112 から予備成形体 106 を取り出して、該予備成形体 106 をホットプレス機 102 における耐火容器 124 内に収容する（ステップ S404）。耐火容器 124 を密封した後、吸気管 130 を通じて耐火容器 124 内の真空引きを行って該耐火容器 124 内を負圧状態にする（ステップ S405）。その後、ヒータ 128 に通電して、耐火容器 124 内の温度を金属 14 の融点の
25 $-10^{\circ}\text{C} \sim -50^{\circ}\text{C}$ にする（ステップ S406）。

所定温度に達した段階で、上パンチ 126 を下方に移動させて、予備成形体 106 を加圧してヒートシンク材 10B を得る（ステップ S407）。その後、加工工程等を経ることによって実際のヒートシンク材 10B として使用される。但

し、カーボン又はその同素体と金属14との結合力を高める元素が添加されている場合には、前記加圧後に、金属14の融点以上まで加熱してもよい。

なお、カーボン又はその同素体への添加元素や金属14への添加元素の好ましい例については、すでに述べたのでここではその詳細な説明を省略する。

- 5 このように、第3の製造方法の各工程を踏むことにより、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が200～350W/mK以上であって、かつ、熱膨張率が $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 14 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材10Bを容易に得ることができる。

- 次に、第4の製造方法について図13及び図14を参照しながら説明する。この第4の製造方法では、図14に示すように、予備成形機100は使用せずに、
10 ホットプレス機102のみを使用することによって行われる。

- 即ち、図13に示すように、まず、ケース70内にカーボン又はその同素体の粉体12aと金属14の粉体14aとを入れて混合して混合物104を得た後（ステップS501）、ケース70内の混合物104を直接ホットプレス機102における耐火容器124内に収容する（ステップS502）。耐火容器124を密封した後、吸気管130を通じて耐火容器124内の真空引きを行って該耐火容器124内を負圧状態にする（ステップS503）。その後、ヒータ128に通電して、耐火容器124内の温度を金属14の融点の $-10^{\circ}\text{C} \sim -50^{\circ}\text{C}$ にする（ステップS504）。
15

- 20 所定温度に達した段階で、上パンチ126を下方に移動させて、混合物104を加圧してヒートシンク材10Bを得る（ステップS505）。

- この第4の製造方法においても、直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が200～350W/mK以上であって、かつ、熱膨張率が $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 14 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であるヒートシンク材10Bを容易に得ることができる。
25

次に、第3の実施の形態に係るヒートシンク材10Cについて図15を参照しながら説明する。

第3の実施の形態に係るヒートシンク材10Cは、図15に示すように、カー

ボン又はその同素体の粉体 1 2 b とバインダー（結合体）等とを混合した混合物を加圧して予備成形体及びブロック（立方体、直方体、又は任意形状であってもよい）を成形し、さらに、このブロックに金属を含浸させて構成している。粉体 1 2 b は、第 2 の実施の形態で用いたカーボン又はその同素体の粉体 1 2 a と同じのものでよい。このヒートシンク材 1 0 C は、最終形状に近い任意の形状に作ることができる。

前記カーボン又はその同素体としては、グラファイトのほかに、ダイヤモンドを使用することができる。また、金属 1 4 としては、銅のほかに、アルミニウムや銀を使用することができる。

- 10 また、前記カーボン又はその同素体の粉体 1 2 b の平均粉末粒度は、 $1\ \mu\text{m}$ ～ $2000\ \mu\text{m}$ であり、前記粉体 1 2 b が最小の長さをとる方向と、最大の長さをとる方向で、その長さの比が 1 : 5 以下であることが好ましい。この場合、強いネットワークはないものの、最終形状に近い任意の形状に作ることができる。従って、後工程の加工を省略することも可能である。そして、カーボン又はその同素体の粉体 1 2 b と金属 1 4 との体積率は、カーボン又はその同素体が 20 vol % ～ 80 vol %、金属 1 4 が 80 vol % ～ 20 vol % の範囲が望ましい。

また、カーボン又はその同素体の粉体 1 2 b 中に、該カーボン又はその同素体と反応するための添加元素を添加することが望ましい。この添加元素は第 2 の実施の形態と同様に選択すればよい。

- 20 前記金属 1 4 には、第 1 の実施の形態の場合と同様に各添加元素を用いることが望ましい。つまり、濡れ性改善のための添加元素、カーボン又はその同素体と金属 1 4 との反応性を向上させるための添加元素、湯流れ性を向上させるための添加元素、融点を低減させるための添加元素などである。

- 次に、第 3 の実施の形態の第 5 の製造方法について図 1 6 を参照しながら説明する。この第 5 の製造方法では、まず、カーボン又はその同素体の粉体 1 2 b に水、バインダー（結合材）を混合させて混合物を用意する（ステップ S 6 0 1）。

そして、その混合物を所定圧力で加圧して予備成形体を成形する（ステップ S 6 0 2）。加圧装置としてはプレス機 6 2（図 7 参照）又は予備成形機 1 0 0

(図10参照)を用いるとよい。

次に、得られた予備成形体に熔融金属14を含浸しやすくするために予熱処理を行う(ステップS603)。この予熱温度は、例えば、熔融金属14が1200℃程度であるならば、グラファイトの予熱温度は1000℃~1400℃が望ましい。この予熱処理を行うことで、ステップS601において用いたバインダーを除去することもできる。

さらに、ステップS604において、予備成形体を焼成してブロックを成形する。焼成する方法は第1の実施の形態と同様に行う。

そして、予備成形体に熔融金属14を含浸させる(ステップS605)。この含浸工程は、第1の実施の形態で示した各含浸工程と同じ処理を行えばよい。例えば、高圧容器30(図2参照)を使用して、第1の製造方法(図3参照)におけるステップS2からステップS9の工程を行うことでヒートシンク材10Cを得ることができる。

この第5の製造方法によれば、ステップS602で行う加圧処理において、粉体の圧粉状況により熱膨張率と熱伝導率を所望の値に制御することができる。

また、得られたヒートシンク材10Cは、熱伝導率がより等方性になり、濡れ性、材料歩留まりも向上するという特徴を持つ。

さらに、金属14の方がネットワークになるので強度を上げることができ、残留気孔も減少させることができる。

またさらに、ヒートシンク材10Cを廉価に製造することができる。すなわち、含浸前のブロックは脆いためにそのままでは加工できない。しかし、粉末予備成形品は、そのものの形状に成形しておいてから含浸することができ、かつ、その後多少の塑性変形にも耐えうるため、複雑形状のヒートシンク材10Cを廉価に得ることができる。

この第5の製造方法においても、前述の各製造方法の場合と同様に、含浸させる金属14に炭化物を形成する元素を添加することで熱膨張を下げるができる。また、濡れ性等の改良元素を添加することにより含浸率を向上させることができる。

また、高い含浸圧力を付与した場合の方が、含浸率が上がり、強度、熱伝導率も向上する。

ここで、第5の製造方法による含浸実施例を図17に示す。図17の充填方法の欄で「無加圧」と表示されているものは、上記加圧工程ステップS602を省略して粉体を敷き詰めた混合物にそのまま金属14を含浸させたことを示している。また、「加圧」と表示されているものは、粉体 1000 cm^3 に水ガラス 10 cm^3 と水 100 cm^3 を添加して圧粉し、その後予熱時（ 1200°C ）に水と水ガラスを除去させて成形したものである。

次に、第3の実施の形態に係るヒートシンク材10の第6の製造方法について図18を参照しながら説明する。この第6の製造方法では、まず、金属を溶解した熔融金属14又は固液共存状態の金属（固液共存金属）を用意する（ステップS701）。ここで、固液共存状態とは金属（一般には合金）を半融状態にしたもの、又は金属溶湯を冷却、攪拌して半凝固状態にしたものをいい、金属を加熱し直接的に半融状態にしたものと、一度完全に溶解した後に冷却して半凝固状態にしたものの両方を指す。

次に、カーボン又はその同素体の粉体12aを前記熔融金属14または固液共存状態の金属に混合させる（ステップS702）。

そして、この粉体12aを混合させた熔融金属14または固液共存金属を鋳造加工し、所望の形状に成形することでヒートシンク材10Cを得ることができる（ステップS703）。

第6の製造方法において得られたヒートシンク材10Cは、第5の製造方法により作製したものと同様の特徴を有する。

次に、1つの実験例（第1の実験例）を示す。この第1の実験例は、3種類のカーボン（P、M、N）について、含浸する金属14の種類、添加元素の種類、含浸方法を変えて、2方向の熱伝導率の違い、2方向の熱膨張率の違い、2方向の曲げ強度の違い、耐水性、添加元素の効果をそれぞれ見たものである。この実験例の結果を図19～図21に示す。また、3種類のカーボン（P、M、N）の各特性を図22に示す。

なお、耐水性は、デシケーター内に少量の水とサンプルを入れ、サンプルを水に浸さずに水の雰囲気曝した状態にして検査した。

まず、含浸方法として金型プレスを用いた場合について見てみると、熱伝導率については、添加元素を含んだ銅合金を含浸させたものの方が純銅を含浸させたものよりも全体に高くなっている。本来、純銅の方が熱伝導率が高いが、カーボンとの濡れ性が悪く、含浸しにくいこと、含浸後のカーボンと金属の界面で熱伝導率が低下することなどが原因と考えられる。

また、純アルミを含浸させたものは、カーバイドを生成する効果とカーボンに対する濡れ性が高いため、純銅を含浸させた場合よりも熱伝導率の高いものが得られるが、添加元素を含む銅合金を含浸させたものの方が熱伝導率が高くなっている。

しかし、含浸方法としてガス加圧を用いた場合は、金型プレスによる場合よりも熱伝導率が高くなっており、ガス加圧によって純銅を含浸させたものの熱伝導率は、添加元素を含んだ銅合金を含浸させたものとほぼ同じになっている。図23に、図19～図21に示す実験結果のうち、金型プレスによる場合とガス加圧による場合の各代表例を抽出して示す。

これは、ガス加圧の方が予熱温度及び溶湯温度の制御がやりやすいためである。もちろん、金型プレスにおいても、設備上の工夫をすることで同レベルの含浸特性（熱伝導率が高くなる）を得ることができる。

熱膨張率については、すべてのカーボンにおいて、純銅を含浸させたもの、銅合金を含浸させたもの、純アルミを含浸させたもので違いはなく、含浸方法によっても違いはなかった。

また、濡れ性を向上させる添加元素を含む銅合金を含浸させたものは、耐水性が良好であり、カーバイドの生成が容易になる添加元素を含む銅合金を含浸させたものは、カーボンのみよりも曲げ強度が向上していることがわかる。

また、これら各サンプルは、面方向と厚さ方向の熱伝導率の比が1：5以下となっており、ほとんど等方性に近い特性を有するため、ヒートシンクとして使用する場合に、設置方向をいちいち考慮する必要がなく、実装面で有利となる。

さらに、2つの実験例（第2及び第3の実験例）を示す。これらの実験例は、第1の実施の形態における、カーボンに金属を含浸させる含浸工程で、容器内を含浸加圧する際を含浸圧力を変えて、残留気孔、密度、均質化、圧縮強度、及び直交する2つの面方向における熱伝導率の違いをそれぞれ見たものである。

- 5 第2の実験例は、含浸圧力を26.7MPa（272kgf/cm²）、及び156.0MPa（1592kgf/cm²）で行った。この実験例の結果を図24に示す。

- 10 図24は、縦軸に気孔率（□で示す）、及び密度（○で示す）をとって、横軸に含浸圧力を取り、プロットしたものである。気孔率のプロットを□で示し、密度のプロットを○で示す。この実験結果から高い含浸圧力を付与した場合の方が、密度は大きくなり、しかも気孔率は減少していることがわかる。

- 15 また、カーボンの圧縮強度（規格：JIS R 1608 ファインセラミックスの圧縮強さ試験方法）は面方向で24.5～34.3MPa（250～35kgf/cm²）、厚さ方向で34.3～44.1MPa（350～450kgf/cm²）なので、この実験から、上記含浸工程ではカーボンの圧縮強度の4～5倍の含浸圧力を付与した場合でも製造上問題のないことが確認できた。

第3の実験例は、含浸圧力を26.7MPa（272kgf/cm²）、及び60.0MPa（612kgf/cm²）で行った。この実験例の結果を図25～図29に示す。

- 20 図25は縦軸に測定密度をとって、横軸に各ロットの密度平均を取りプロットしたものである。

この図25から、含浸圧力を高くした方がロットごとの密度平均のばらつきが小さいことが分かる。

- 25 図26～図28は、横軸に含浸圧力をとって、縦軸にはそれぞれ、厚さ方向の熱伝導率、圧縮強度、及び密度をとってプロットしたものである。これらの図26～図28から、高い含浸圧力を付与した場合の方が、各特性とも値が向上していることがわかる。

図29は、直交する2つの面方向での熱伝導率の違いをプロットしたものであ

る。一方をX方向として横軸にとり、もう一方をY方向として縦軸にとった。この図29から、高い含浸圧力を付与した場合の方が、面方向でのばらつきが少ないことがわかる。

前記第2及び第3の実験例では、含浸圧力を高くしたことで、金属14の含浸
5 量が増えたことにより、各効果を奏したものと考えられる。

さらに、別の2つの実験例（第4及び第5の実験例）を示す。この第4及び第5の実験例は、第4の実施の形態において、カーボンに金属14を含浸させる含浸工程で、含浸加圧する際の含浸圧力と、金属14に添加する元素とを変えて、残留気孔の変化をそれぞれ見たものである。

10 第4の実験例は、含浸金属にCu0.1Nbを採用し、含浸圧力を加えない元素材と、27MPa、48MPa、及び60MPaを加圧した場合で行った。この実験例の結果を図31に示す。

図31は横軸に気孔径、縦軸に残留気孔容積をとり、各含浸圧力の場合における違いを見たものである。この図31から、含浸圧力を上げることで含浸後の残留
15 気孔率が減少していることが分かる。

第5の実験例は、含浸させる金属に元素を添加しない元素材と、Cu5Siを添加した場合及びCu0.1Nbを添加した場合であり、含浸圧力については27MPaの場合と43MPaの場合で実験した。この実験例の結果を図32に示す。

20 図32における元素材は、図31における元素材と同条件であるので、それぞれの波形はほぼ同じ形状になっている。

添加した元素のCu5Siは、固相／液相温度範囲が30℃以上あるので、Cu0.1Nbに比べて湯流れ性（濡れ性）がよい。その結果、Cu5Siを添加したものの方が残留気孔が減少していることが分かる。また、含浸圧力を上げた
25 方が含浸後の残留気孔が減少する傾向がみられるが、これは図31と同じ傾向といえる。また、残留気孔が減少することにより強度の向上を図ることができる。

次に、カーボン又はその同素体に代えて、SiCを多孔質焼結体として利用する場合について説明する。

SiCに濡れ性改善のための添加剤を入れるには、金属の成分に5%までの範囲で、Be、Al、Si、Mg、Ti、Niから選択された1種以上の添加元素を含むことが好ましい。これらの元素は、カーボンを多孔質焼結体として利用した場合とは異なるので注意する。

5 そして、SiCと金属14との濡れ性の向上を図って、SiCに予め1~10 vol%、望ましくは3~5 vol%のNiめっきを施すことが好ましい。この場合、低圧力での含浸を実現させることができる。ここでいう、Niめっきとしては、予熱時に熔融しないめっき処理が望ましく、例えばNi-P-WのめっきやNi-B-Wのめっき等が含まれる。

10 また、SiCと金属14との濡れ性の向上を図って、SiCに予めSiを1~10 vol%、望ましくは3~5 vol%含浸させることが好ましい。この場合も低圧力での含浸を実現させることができる。

 そして、前記SiCに予め1~10 vol%のNiめっきを施す、あるいは、予めSiを1~10 vol%含浸させることに関連して、SiCに予めパラジウムめっきを施すようにしてもよい。この場合、前記パラジウムめっきに加えて、
15 NiやSiとの複合めっきを施すことも可能である。

 また、SiCと金属14は高温において反応が生じ、該SiCがSiとCに分解されて本来の機能が発揮されなくなる。このため、SiCと金属14とが高温で直接接触する時間を短縮することが必要である。第1の処理条件（高圧容器3
20 0に付与する圧力=0.98MPa（10kgf/cm²）以上、98MPa（1000kgf/cm²）以下）、第2の処理条件（加熱温度=金属14の融点より30℃~250℃高い温度）又は第3の処理条件（SiCに予め1~10 vol%のNiめっきを施す）を満足させることにより、SiCと金属14との接触時間を短くすることができるため、前記のようなSiCの分解反応を事前に
25 回避することができる。

 また、SiCと金属14とは濡れ性が悪いことから、金属14を十分に含浸させるには高圧力をかけることが必要である。第3の処理条件（SiCに予め1~10 vol%のNiめっきを施す）、又は第4の処理条件（SiCに予めSiを

1～10 vol%含浸させる)を行うことによりSiCの気孔表面が改質され、SiCと金属14との濡れ性が良好となるため、より低圧力でより細かい気孔にまで金属14を含浸させることができる。

- ここで、さらに別の実験例(第6の実験例)を示す。この第6の実験例は、SiCの気孔率、気孔径、Niめっきの有無、Si含浸の有無、含浸温度、加圧力、加圧時間、冷却速度を適宜変えて、そのときのSiC/Cuの反応状況とCuの含浸状況の違いをみたものである。その実験結果を図30の表図に示す。この図30において、SiC/Cuの反応状況は、SiCとCuとの間に形成された反応層の厚み(平均値)によって決定させた。その決定条件は、以下の通りである。
- 5 また、この決定条件の根拠は、SiCとCuとの間に5 μ m以上の反応層が生じると、SiCとCu間の熱伝達が悪化し、半導体ヒートシンク用複合材料とした場合の熱伝導率が低下するからである。

- ・反応層の厚み(平均)が1 μ m以下 → 「反応無し」
- ・反応層の厚み(平均)が1 μ mを超え5 μ m以下 → 「反応少」
- 15 ・反応層の厚み(平均)が5 μ mを超える → 「反応大」

この実験結果から、SiCの気孔率、気孔径、含浸温度、加圧力、加圧時間及び冷却速度についてそれぞれ所定範囲を満足するもの(サンプル3、7、8、11及び12)については、いずれもSiC/Cuの反応状況が「反応無し」で、かつCuの含浸状況が良好となっており、良好な結果が得られている。

- 20 これらサンプルのうち、サンプル3、7、11及び12については、NiめっきあるいはSi含浸を行っているため、Cuとの濡れ性が良好となり、加圧時間を短くしても前記のように良好な結果が得られた。また、サンプル8については、Niめっき及びSi含浸を行っていないが、加圧力を高くしたことによって、加圧時間を短くすることが可能となり、前記のように良好な結果が得られた。

- 25 一方、加圧力が前記所定範囲よりも低い0.78 MPa (8 kgf/cm²)であるサンプル1、5及び9については、Cuの含浸状況がいずれも不十分となっており、これらサンプルのうち、加圧時間が長いものについては(サンプル1及び5)、SiC/Cuの反応状況が「反応大」となっている。

なお、サンプル6について、SiC/Cuの反応状況が「反応少」にも拘わらず含浸状況が不十分となっているのは、気孔率及び気孔径がそれぞれ所定範囲を満たしていないからと考えられ、サンプル14について、含浸状況が良好であるにも拘わらずSiC/Cuの反応状況が「反応大」となっているのは、気孔径が

5 所定範囲よりも大きく、加圧時間が比較的長いからと考えられる。

次に、多孔質焼結体にSiCを利用した実施の形態について説明する。まず、前記第1の実施の形態（第1の製造方法、第1の変形例、第2の変形例、及び第2の製造方法）において、SiCを利用する場合は、グラファイトを焼成して多孔質焼結体を作製する工程（ステップS1、ステップS101、ステップS20

10 1、ステップS301、及びステップS302）は不要であり、その後のステップでは同じ工程で製造することができる。

さらに、多孔質焼結体にSiCを利用した実施の形態として、第4の実施の形態に係る製造方法（第7の製造方法）について、図33～図36を参照しながら説明する。

15 この第7の製造方法は、具体的には図33にその一例を示すように、ホットプレス機1060を使用することによって行われる。このホットプレス機1060は、前記第2の実施の形態で説明したホットプレス機102とほぼ同じ構造であるが、便宜上、図を分けて説明する。

このホットプレス機1060は、筒状の筐体1062内に、基台を兼ねる下パンチ1064と、該下パンチ1064上に固定された上面開口の耐火容器106

20 6と、該耐火容器1066内に上方から進退自在とされた上パンチ1068と、前記耐火容器1066を加熱するためのヒータ1070が設けられている。なお、このホットプレス機1060には、真空引きのための吸気管1072が設けられている。

25 前記耐火容器1066は、中空部1074を有する筒状の形状を有する。上パンチ1068は、その側面に、該上パンチ1068の行程（ストローク）を決定するフランジ部1076が設けられ、該フランジ部1076の下面には、前記耐火容器1066の上周面と接触して耐火容器1066を密閉状態にするためのパ

ッキン1078が取り付けられている。一方、下パンチ1064の内部には、耐火容器1066内を加熱するための加熱用流体や耐火容器1066内を冷却するための冷却用流体を流通させる通路1080が設けられている。

そして、第7の製造方法は、図34に示す工程を踏むことにより行われる。

- 5 まず、耐火容器1066の中空部1074内に、下からSiC1020、多孔質セラミック製のフィルタ1054、金属14の塊の順で投入する（ステップS1301）。フィルタ1054としては、気孔率が40%~90%で、かつ気孔径が0.5mm~3.0mmである多孔質セラミック材を用いることが望ましく、より好ましくは気孔率が70%~85%で、かつ気孔径が1.0mm~2.0mmである多孔質セラミック材を用いることが望ましい。
- 10

- また、前記フィルタ1054は、SiC1020と金属14の塊とを仕切って両者を非接触状態におく仕切板としての機能を果たし、中空部1074のうち、フィルタ1054上の金属14の塊がセットされた部分を上室1074a、フィルタ1054下のSiC1020がセットされた部分を下室1074bとして定義することができる。
- 15

次に、耐火容器1066を密封した後、吸気管1072を通じて耐火容器1066内の真空引きを行って該耐火容器1066の両室1074a及び1074b内を負圧状態にする（ステップS1302）。

- その後、ヒータ1070に通電して上室1074a内の金属14を加熱溶解する（ステップS1303）。このとき、前記ヒータ1070への通電と併せて下パンチ1064の通路1080内に加熱用流体を流して耐火容器1066の内部を加熱するようにしてもよい。
- 20

- 上室1074a内の金属14の溶解物（熔融金属）が所定温度に達した段階で、上パンチ1068を下方に移動させて上室1074a内を所定圧まで加圧する（ステップS1304）。このとき、上パンチ1068のフランジ部1076に取り付けられたパッキン1078と耐火容器1066の上周面との接触及び互いの押圧により、耐火容器1066が密封され、内部の熔融金属が耐火容器1066の外に漏れるという不都合が有効に防止される。
- 25

所定圧になった上室1074a内の金属14の溶解物（熔融金属）は上室1074a内の圧力によってフィルタ1054を通して下室1074b側に押し出されて該下室1074b内に導入されると同時に、該下室1074b内に設置されたSiC1020に含浸される。

- 5 時間管理によって予め設定されている終点（SiC1020内への熔融金属14の含浸が飽和状態とされた時点）となった段階において、今度は、下パンチ1064内の通路1080に冷却用流体を流して耐火容器1066を下方から上方に向かって冷却させることにより（ステップS1305）、SiC1020に含浸された熔融金属14を凝固させる。凝固が完了するまで上パンチ1068と下
- 10 パンチ1064による耐火容器1066内の加圧状態は保持される。

凝固が完了した時点で、金属14が含浸されたSiC1020を耐火容器1066から取り出す（ステップS1306）。

- この製造方法においては、SiC1020と金属14とを十分に脱気しつつ加熱し、金属14を熔融した後、速やかにSiC1020に接触させ、かつ、これ
- 15 らを加圧状態とし、さらにその加圧状態を冷却操作完了時まで保持するようにしたので、SiC1020に金属14を効率的に含浸することができる。前記例では含浸処理を負圧下で行うようにしたが、常圧下で行ってもよい。

- このように、熔融金属14とSiC1020を共に加圧下においた後に、互いに接触させて、含浸処理を行うようにしたので、両者を接触させる際の圧力低下
- 20 を最小限にすることができ、含浸処理時における加圧状態を良好に保持させることができる。

- 前記例では、熔融金属14の漏れを防止するために、上パンチ1068におけるフランジ部1076の下面にパッキン1078を設けるようにしたが、図33の二点鎖線で示すように、耐火容器1066の上周面にパッキン1078を設けるようにしてもよい。また、図35Aに示すように、リング状の割型パッキン1
- 25 100を2枚重ねにしたパッキン部材1102を、図36に示すように、上パンチ1068の下部に設けるようにしてもよい。この場合、パッキン部材1102の中空部1104に熔融金属が入り込むことにより各割型パッキン1100の直

径が拡大し、結果的に上室1074aが密封されて熔融金属14の漏れが防止されることになる。

- 次に、第7の製造方法の変形例について図37及び図38を参照しながら説明する。なお、図33と対応する構成要素については同符号を付してその重複説明を省略する。

- この変形例に係る製造方法においては、ホットプレス機1060として、図37に示すように、耐火容器1066における中空部1074の高さ方向中央部に多孔質セラミックスにて構成されたフィルタ部材1110が固着され、下室1074bの側面に扉1112が開閉自在に取り付けられたものが使用される。従って、耐火容器1066の中空部1074のうち、フィルタ部材1110よりも上の部分が上室1074aとなり、フィルタ部材1110よりも下の部分が下室1074bとなる。特に、下室1074bに取り付けられた扉1112に関しては、該扉1112を閉じたときに下室1074bが密封されるような構造が採用される。

- そして、この変形例に係る製造方法は、図38に示す工程を踏むことにより行われる。

まず、耐火容器1066の上室1074a内に金属14の塊を投入し、下室1074bの扉1112を開いて該下室1074b内にSiC1020を投入する(ステップS1401)。

- 次に、扉1112を閉じて下室1074bを密封し、さらにホットプレス機1060を密封した後、吸気管1072を通じて耐火容器1066内の真空引きを行って該耐火容器1066の両室1074a及び1074b内を負圧状態にする(ステップS1402)。

- その後、ヒータ1070に通電して上室1074a内の金属14を加熱溶解する(ステップS1403)。この場合も前記ヒータ1070への通電と併せて下パンチ1064の通路1080内に加熱用流体を流して耐火容器1066の内部を加熱するようにしてもよい。

上室1074a内の金属14の溶解物(熔融金属)が所定温度に達した段階で、

-38-

上パンチ1068を下方に移動させて上室1074a内を所定圧まで加圧する(ステップS1404)。

所定圧になった上室1074a内の金属14の溶解物(熔融金属)は上室1074a内の圧力によってフィルタ部材1110を通して下室1074b側に押し出されて該下室1074b内に導入されると同時に、該下室1074b内に設置されたSiC1020に含浸される。

時間管理によって予め設定されている終点となった段階において、今度は、下パンチ1064内の通路1080に冷却用流体を流して耐火容器1066を下方から上方に向かって冷却させることにより(ステップS1405)、SiC1020に含浸された熔融金属14を凝固させる。

凝固が完了した時点で、金属14が含浸されたSiC1020を耐火容器1066から取り出す(ステップS1406)。

この変形例に係る製造方法においても、第7の製造方法と同様に、SiC1020に金属14を効率的に含浸することができる。また、この変形例でも、熔融金属14とSiC1020を共に加圧下においた後に、互いに接触させて、含浸処理を行うようにしているため、両者を接触させる際の圧力低下を最小限にすることができ、含浸処理時における加圧状態を良好に保持させることができる。なお、この変形例では、負圧下で含浸処理を行うようにしたが、常圧下で行ってもよい。

さらに、多孔質焼結体にSiCを利用した実施の形態として、第5の実施の形態に係る製造方法(第8の製造方法)について、図39及び図40を参照しながら説明する。なお、図33と対応する構成要素については同符号を記してその重複説明を省略する。

この第8の製造方法は、前記第4の実施の形態に係る製造方法と原理的にはほぼ同じであるが、含浸工程において、SiC1020と金属14とを負圧下又は常圧下で接触させ、加熱処理して前記金属14を熔融する点で異なる。

具体的には、図33に示した第3の実施の形態に係る製造方法にて使用されるホットプレス機1060の耐火容器1066内にフィルタ1054を投入せずに、

下からSiC1020、金属14の順に投入する点で異なる。

そして、第5の実施の形態に係る製造方法は、図40に示す工程を踏むことにより行われる。

まず、耐火容器1066の中空部1074内に、下からSiC1020、金属
5 14の塊の順に投入する（ステップS1501）。

次に、ホットプレス機1060を密封した後、吸気管1072を通じて耐火容器1066内の真空引きを行って該耐火容器1066内を負圧状態にする（ステップS1502）。

その後、ヒータ1070に通電して耐火容器1066内の金属14を加熱溶解
10 する（ステップS1503）。このとき、前記ヒータ1070への通電と併せて下パンチ1064の通路1080内に加熱用流体を流して耐火容器1066の内部を加熱するようにしてもよい。

耐火容器1066内の金属14の溶解物（熔融金属）が所定温度に達した段階で、上パンチ1068を下方に移動させて耐火容器1066内を所定圧まで加圧
15 する（ステップS1504）。

所定圧になった金属14の溶解物（熔融金属）は耐火容器1066内の圧力によってSiC1020に含浸される。

時間管理によって予め設定されている終点（SiC1020内への熔融金属の含浸が飽和状態とされた時点）となった段階において、今度は、下パンチ106
20 4内の通路1080に冷却用流体を流して耐火容器1066を下方から上方に向かって冷却することにより（ステップS1505）、SiC1020に含浸された熔融金属を凝固させる。凝固が完了するまで上パンチ1068と下パンチ1064による耐火容器1066内の加圧状態は保持される。

凝固が完了した時点で、金属14が含浸されたSiC1020を耐火容器10
25 66から取り出す（ステップS1506）。

この第8の製造方法においても、SiC1020と金属14とを十分に脱気しつつ加熱し、金属14とSiC1020とを接触させた状態で金属14を熔融した後、耐火容器1066内を加圧状態とし、さらにその加圧状態を冷却操作完了

-40-

時まで保持するようにしたので、SiC1020に金属14を効率的に含浸することができる。

なお、この発明に係るヒートシンク材及びその製造方法は、上述の実施の形態に限らず、この発明の要旨を逸脱することなく、種々の構成を採り得ることはも

5 ちろんである。

-41-

請求の範囲

1. カーボン又はその同素体と、金属(14)とを含み、
直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が160W/mK以上であることを特徴とするヒートシンク材。
5
2. 請求項1記載のヒートシンク材において、
直交する3軸方向の平均又はいずれかの軸方向の熱伝導率が180W/mK以上であって、かつ、
10 熱膨張率が $1 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C} \sim 10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であることを特徴とするヒートシンク材。
3. 請求項1記載のヒートシンク材において、
前記同素体がグラファイトであることを特徴とするヒートシンク材。
15
4. 請求項1記載のヒートシンク材において、
前記同素体がダイヤモンドであることを特徴とするヒートシンク材。
5. 請求項1記載のヒートシンク材において、
20 前記カーボン又はその同素体として、熱伝導率が100W/mK以上のものが使用されていることを特徴とするヒートシンク材。
6. 請求項1、3又は5のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記カーボン又はその同素体を焼成してネットワーク化することによって得ら
25 れる多孔質焼結体(12)に前記金属(14)が含浸されて構成されていることを特徴とするヒートシンク材。
7. 請求項6記載のヒートシンク材において、

前記多孔質焼結体(12)の気孔率が10vol%~50vol%であって、平均気孔径が0.1 μ m~200 μ mであることを特徴とするヒートシンク材。

8. 請求項6又は7記載のヒートシンク材において、

- 5 前記カーボン又はその同素体と前記金属(14)との体積率が、前記カーボン又はその同素体が50vol%~80vol%、金属(14)が50vol%~20vol%の範囲であることを特徴とするヒートシンク材。

9. 請求項6~8のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 10 前記カーボン又はその同素体に、該カーボン又はその同素体を焼成した際の閉気孔率を低減させる添加物が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

10. 請求項9記載のヒートシンク材において、

- 15 前記閉気孔率を低減させる添加物が、SiC及び/又はSiであることを特徴とするヒートシンク材。

11. 請求項1、3又は5のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 20 前記カーボン又はその同素体の粉体(12b)に、水又は結合材を混合し、所定圧力下で成形された予備成形体に、前記金属(14)が含浸されて構成されていることを特徴とするヒートシンク材。

12. 請求項11記載のヒートシンク材において、

前記カーボン又はその同素体の粉体(12b)の平均粉末粒度が1 μ m~2000 μ mであり、

- 25 前記粉体(12b)が最小の長さをとる方向と、最大の長さをとる方向で、その長さの比が1:5以下であることを特徴とするヒートシンク材。

13. 請求項11又は12記載のヒートシンク材において、

前記カーボン又はその同素体と前記金属(14)との体積率が、前記カーボン又はその同素体が20vol%～80vol%、金属(14)が80vol%～20vol%の範囲であることを特徴とするヒートシンク材。

- 5 14. 請求項1、3又は5のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)が溶解した液体状態又は固液共存状態に、前記カーボン又はその同素体の粉体(12b)を混合し、鑄造成形されて構成されていることを特徴とするヒートシンク材。
- 10 15. 請求項6～14のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
閉気孔率が12vol%以下であることを特徴とするヒートシンク材。
16. 請求項6～15のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、界面の濡れ性改善のための元素が添加されていることを特
15 徴とするヒートシンク材。
17. 請求項16記載のヒートシンク材において、
前記界面の濡れ性改善のための添加元素がTe、Bi、Pb、Sn、Se、Li、Sb、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上であることを特徴と
20 するヒートシンク材。
18. 請求項6～17のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。
- 25 19. 請求項18記載のヒートシンク材において、
前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための添加元素がNb、Cr、Zr、Be、Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上であるこ

とを特徴とするヒートシンク材。

20. 請求項6～19のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、湯流れ性を向上させるため、固相／液相の温度範囲が3
5 0℃以上の元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

21. 請求項20記載のヒートシンク材において、
前記添加元素がSn、P、Si、Mgから選択された1種以上であることを特
徴とするヒートシンク材。

10

22. 請求項6～21のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、融点を低減させるための元素が添加されていることを特徴
とするヒートシンク材。

- 15 23. 請求項22記載のヒートシンク材において、
前記添加元素がZnなどであることを特徴とするヒートシンク材。

24. 請求項6～23のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、熱伝導率を向上させるための元素が添加されていることを
20 特徴とするヒートシンク材。

25. 請求項24記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、前記熱伝導率を向上させるための元素を添加し、熱処理、
加工及びカーボンとの反応後、偏析等によって得られる合金の熱伝導率が10W
25 /mK以上であることを特徴とするヒートシンク材。

26. 請求項1～5のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記カーボン又はその同素体の粉体(12a)と前記金属(14)の粉体(14a)とを

混合し、所定圧力下で成形されて構成されていることを特徴とするヒートシンク材。

27. 請求項26記載のヒートシンク材において、

- 5 前記カーボン又はその同素体の粉体(12a)と前記金属(14)の粉体(14a)の平均粉末粒度が $1\mu\text{m}\sim 500\mu\text{m}$ であることを特徴とするヒートシンク材。

28. 請求項1～5のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 10 前記カーボン又はその同素体の粉碎裁断材と前記金属(14)の粉体とを混合し、所定温度、所定圧力下で成形されて構成されていることを特徴とするヒートシンク材。

29. 請求項26～28のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 15 前記カーボン又はその同素体と前記金属(14)との体積率が、前記カーボン又はその同素体が $20\text{vol}\%\sim 60\text{vol}\%$ 、金属(14)が $80\text{vol}\%\sim 40\text{vol}\%$ の範囲であることを特徴とするヒートシンク材。

30. 請求項26～29のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 20 熱伝導率が $200\text{W}/\text{mK}$ 以上であって、かつ、熱膨張率が $8\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}\sim 14\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ であることを特徴とするヒートシンク材。

31. 請求項26～30のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

- 25 前記カーボン又はその同素体に、成形後の再焼成を可能とする添加物が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

32. 請求項31記載のヒートシンク材において、

- 前記成形後の再焼成を可能とする添加物が、SiC及び/又はSiであることを特徴とするヒートシンク材。

33. 請求項26～32のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、界面の濡れ性改善のための低融点金属が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

5

34. 請求項33記載のヒートシンク材において、
前記低融点金属がTe、Bi、Pb、Sn、Se、Li、Sb、Se、Tl、Ca、Cd、Niから選択された1種以上であることを特徴とするヒートシンク材。

10

35. 請求項26～34のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、
前記金属(14)に、前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

15 36. 請求項35記載のヒートシンク材において、

前記カーボン又はその同素体との反応性を向上させるための添加元素がNb、Cr、Zr、Be、Ti、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上であることを特徴とするヒートシンク材。

20 37. 請求項26～36のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

前記金属(14)に、湯流れ性を向上させるため、固相／液相の温度範囲が30℃以上の元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

38. 請求項37記載のヒートシンク材において、

25 前記添加元素がSn、P、Si、Mgから選択された1種以上であることを特徴とするヒートシンク材。

39. 請求項26～38のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

前記金属(14)に、融点を低減させるための元素が添加されていることを特徴とするヒートシンク材。

40. 請求項39記載のヒートシンク材において、

5 前記添加元素がZnなどであることを特徴とするヒートシンク材。

41. 請求項1～40のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

前記カーボン又はその同素体の表面に、カーバイド層が形成されていることを特徴とするヒートシンク材。

10

42. 請求項41記載のヒートシンク材において、

前記カーバイド層の形成は、少なくとも前記カーボン又はその同素体と添加元素との反応に基づくものであることを特徴とするヒートシンク材。

15 43. 請求項42記載のヒートシンク材において、

前記添加元素が、Ti、W、Mo、Nb、Cr、Zr、Be、Ta、V、B、Mnから選択された1種以上であることを特徴とするヒートシンク材。

44. 請求項1～43のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

20 前記金属(14)は、Cu、Al、Agから選択された少なくとも1種であることを特徴とするヒートシンク材。

45. 請求項1～44のいずれか1項に記載のヒートシンク材において、

25 最小の熱伝導率をとる方向と、最大の熱伝導率をとる方向で、熱伝導率の比が1：5以下であることを特徴とするヒートシンク材。

46. カーボン又はその同素体を焼成してネットワーク化することによって多孔質焼結体(12)を作製する焼成工程と、

金属(14)を前記多孔質焼結体(12)中に含浸させる含浸工程と、
少なくとも前記金属(14)が含浸された前記多孔質焼結体(12)を冷却する冷却工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

5 47. 請求項46記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記焼成工程は、容器内に前記カーボン又はその同素体を入れ、該容器内を加熱することにより、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体(12)を作製することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

10 48. 請求項46又は47記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記含浸工程は、容器内に入れられた前記金属(14)の溶湯に前記多孔質焼結体(12)を浸漬し、前記容器内に含浸用ガスを導入して前記容器内を加圧することにより、前記溶湯を多孔質焼結体(12)中に含浸させることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

15

49. 請求項48記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記加圧力が、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体(12)の圧縮強度の4～5倍以下であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

20 50. 請求項49記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記加圧力が、1.01～202MPa(10～2000気圧)であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

25 51. 請求項46～50のいずれか1項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記冷却工程は、前記容器内の前記含浸用ガスを抜き、速やかに冷却用ガスを導入して前記容器内を冷却することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

5 2. 請求項 4 6 ~ 5 1 のいずれか 1 項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記焼成工程は、ケース(70)内に前記カーボン又はその同素体を収容する工程と、前記ケース(70)内を予熱して、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体(12)を作製する工程とを有し、

前記含浸工程は、プレス機(62)の金型(82)に前記ケース(70)を収容する工程と、前記ケース内に前記金属(14)の溶湯(86)を注湯する工程と、前記プレス機(62)のパンチ(84)で前記溶湯(86)を押し下げ圧入して前記ケース(70)内の前記多孔質焼結体(12)中に前記溶湯(86)を含浸させる工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

5 3. 請求項 5 2 記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記パンチ(84)による圧入時の圧力が、前記カーボン又はその同素体による多孔質焼結体(12)の圧縮強度の 4 ~ 5 倍以下であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

5 4. 請求項 5 3 記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記パンチ(84)による圧入時の圧力が、1.01 ~ 202 MPa (10 ~ 2000 気圧)であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

5 5. 請求項 5 3 又は 5 4 記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記金型(82)として、前記多孔質焼結体(12)に残存するガスを抜くためのガス抜き孔、又は、ガスを抜くための隙間部が形成された金型(82)を用いることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

5 6. 請求項 4 6 ~ 5 5 のいずれか 1 項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記冷却工程は、前記多孔質焼結体(12)に前記金属(14)が含浸された前記ヒ

ートシンク材を、冷却ガスの吹き付けもしくは冷却水が供給されている冷却ゾーン又は冷却用金型で冷却することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

5 57. カーボン又はその同素体の粉体(12b)に、水又は結合材を混合する工程と、

前記混合物を所定圧力下で予備成形体を成形する工程と、
金属(14)を前記予備成形体中に含浸させる含浸工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

10 58. 金属(14)が溶解した液体状態又は固液共存状態に、カーボン又はその同素体の粉体(12a)を混合する工程と、

前記混合物を鋳造成形する工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

15 59. カーボン又はその同素体の粉体と金属(14)の粉体(14a)とを混合する混合工程と、

前記混合物(104)をホットプレス機(102)の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

20

60. カーボン又はその同素体の粉体と金属(14)の粉体(14a)とを混合する混合工程と、

前記混合物(104)を予備成形して予備成形体(106)とする予備成形工程と、

25 前記予備成形体(106)をホットプレス機(102)の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

61. カーボン又はその同素体の粉碎裁断材料と金属(14)の粉体(14a)とを混

合し、予備成形して混合物(104)を作製する混合工程と、

前記混合物(104)をホットプレス機(102)の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

5

6 2. カーボン又はその同素体の粉碎裁断材料と金属(14)の粉体(14a)とを混合する混合工程と、

前記混合物(104)を予備成形して予備成形体(106)とする予備成形工程と、

10 前記予備成形体(106)をホットプレス機(102)の金型内に入れ、所定温度、所定圧力下で成形してヒートシンク材を作製する加圧工程とを有することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

6 3. 請求項 5 9 ~ 6 2 のいずれか 1 項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

15 前記所定温度が前記金属(14)における融点の $-10^{\circ}\text{C} \sim -50^{\circ}\text{C}$ であり、

前記所定圧力が $10.13 \sim 101.32 \text{ MPa}$ ($100 \sim 1000$ 気圧)であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

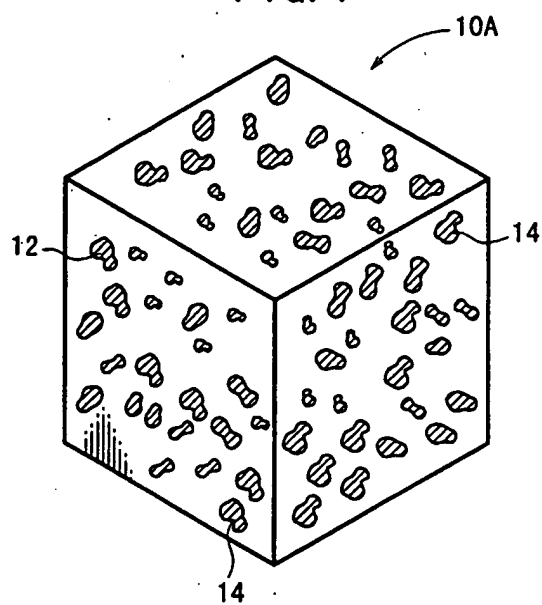
20 6 4. 請求項 5 9 ~ 6 3 のいずれか 1 項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

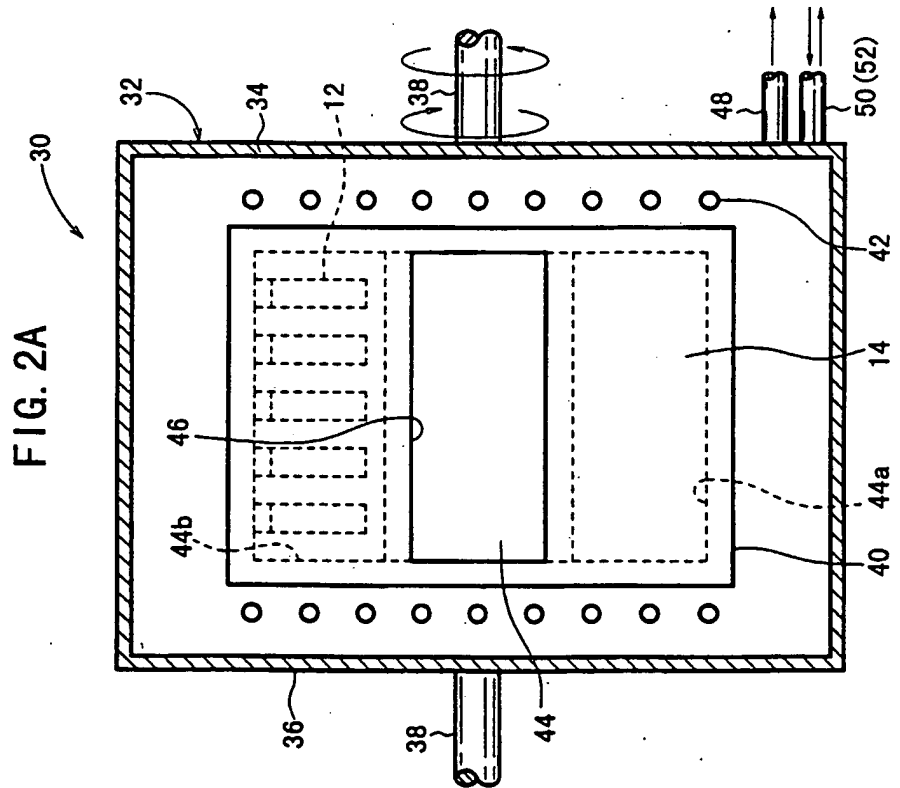
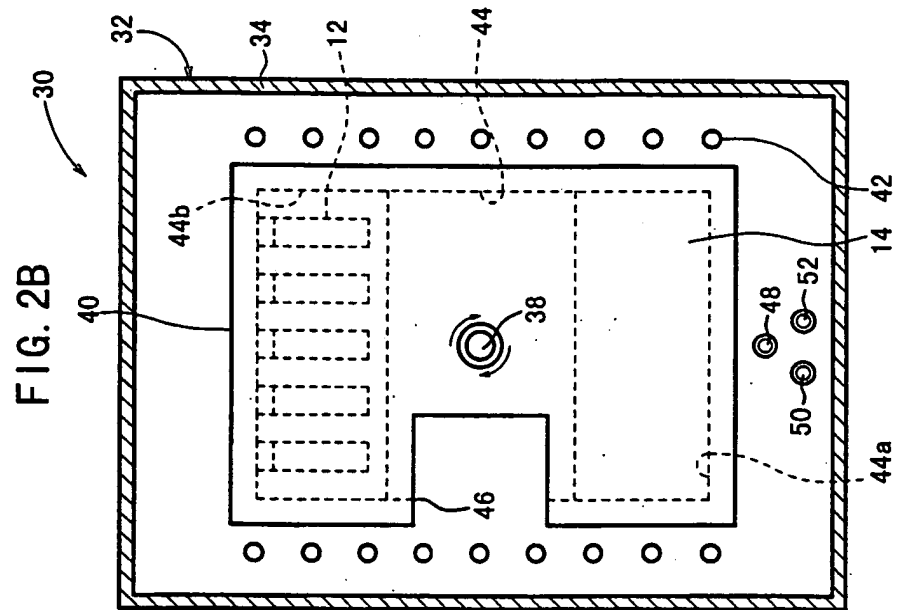
加圧工程後に、前記ヒートシンク材を前記金属(14)における融点以上まで加熱することを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

25 6 5. 請求項 4 6 ~ 6 4 のいずれか 1 項に記載のヒートシンク材の製造方法において、

前記金属(14)は、Cu、Al、Agから選択された少なくとも1種であることを特徴とするヒートシンク材の製造方法。

FIG. 1





3/40

FIG. 3

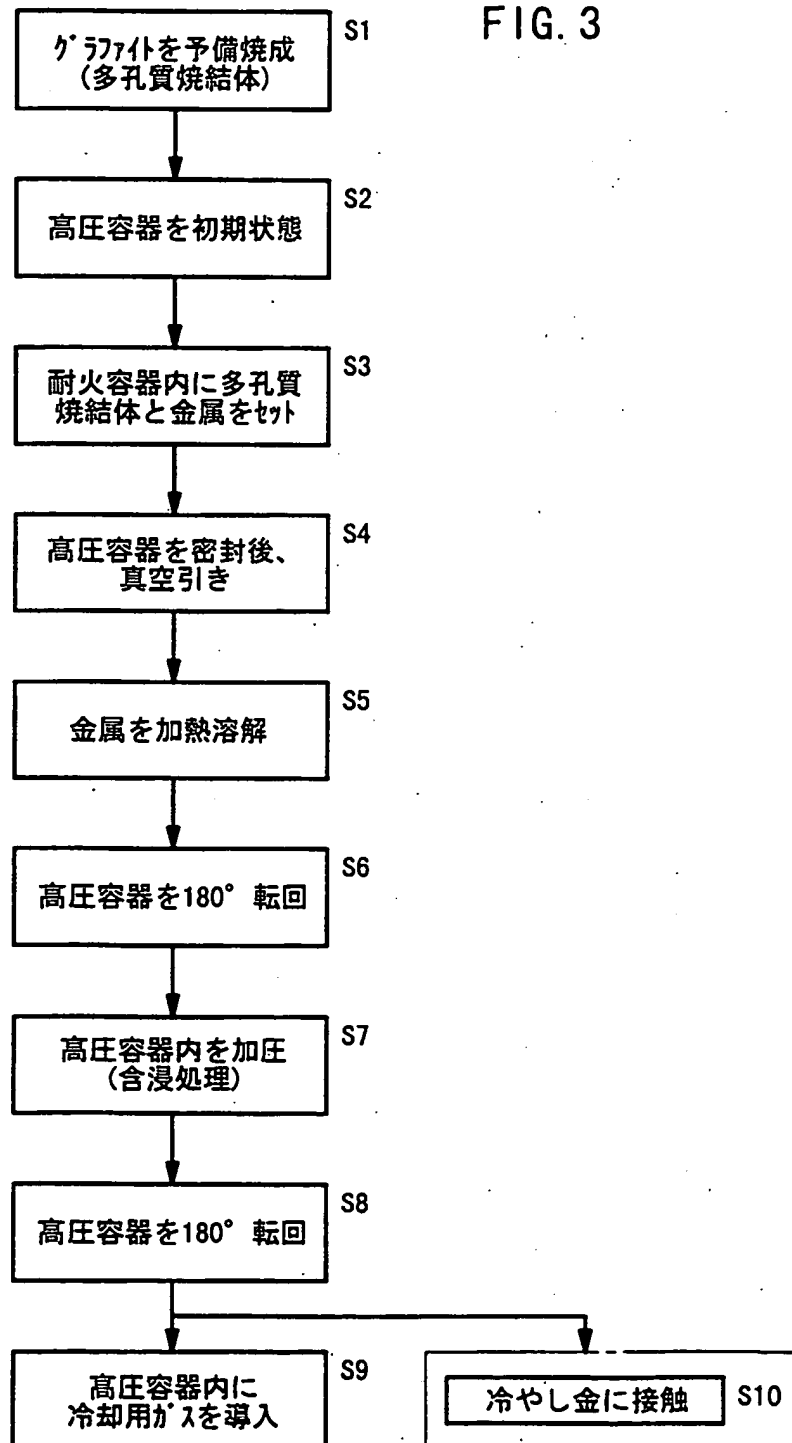


FIG. 4

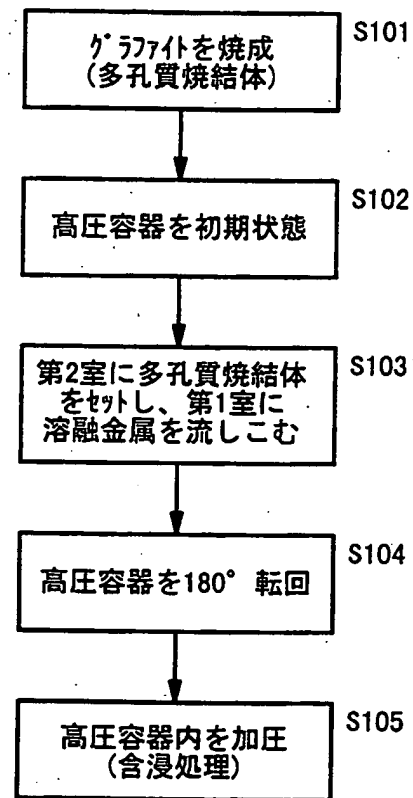
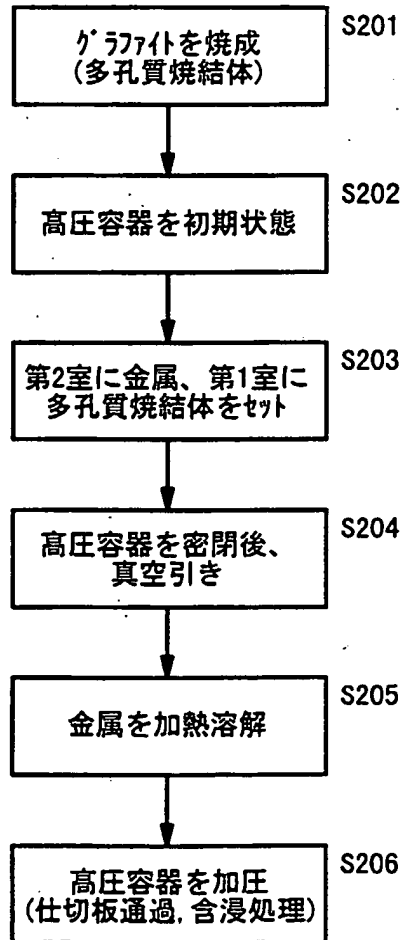
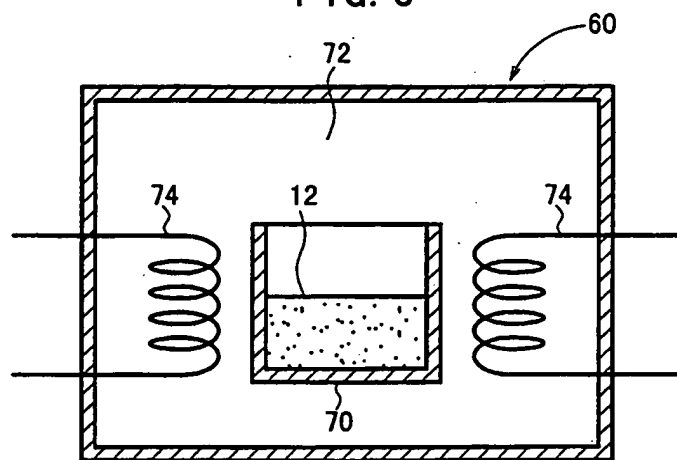


FIG. 5



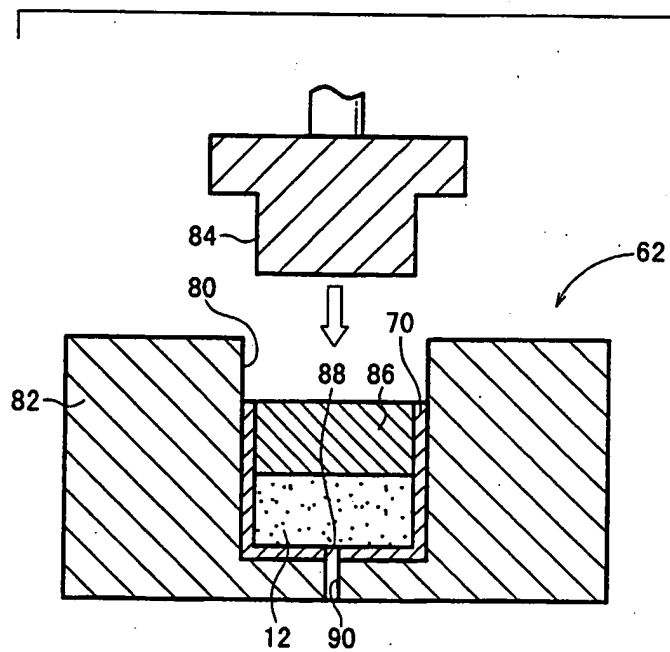
6/40

FIG. 6



7/40

FIG. 7



8/40

FIG. 8

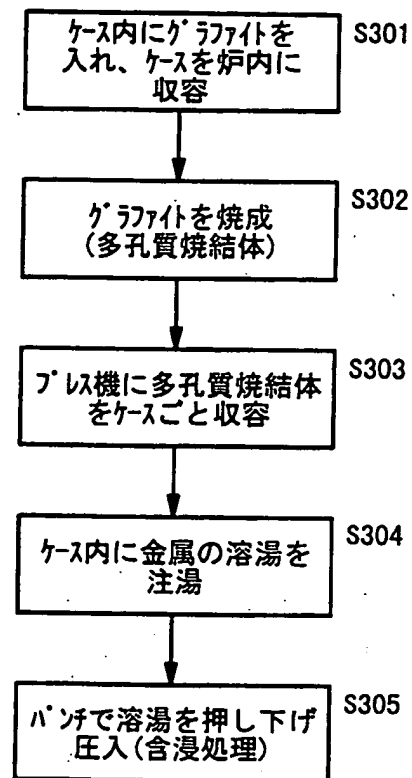
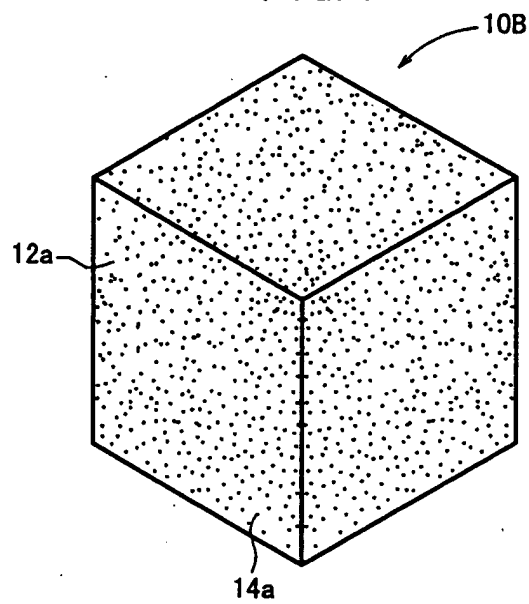
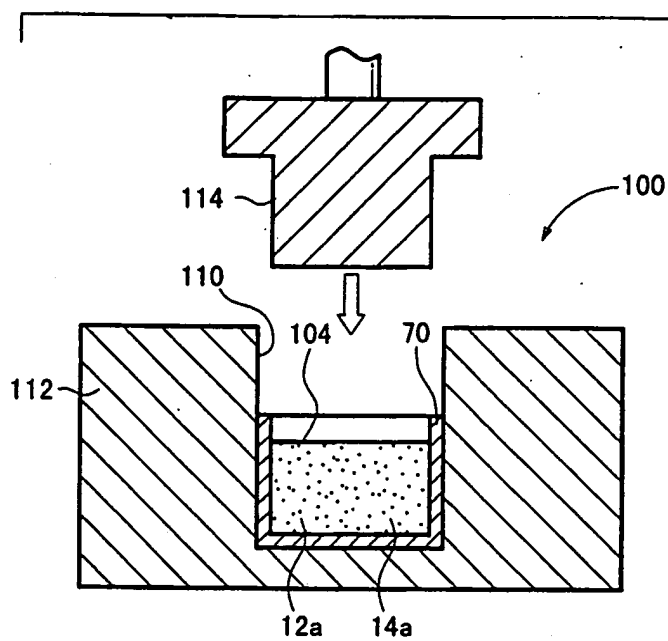


FIG. 9



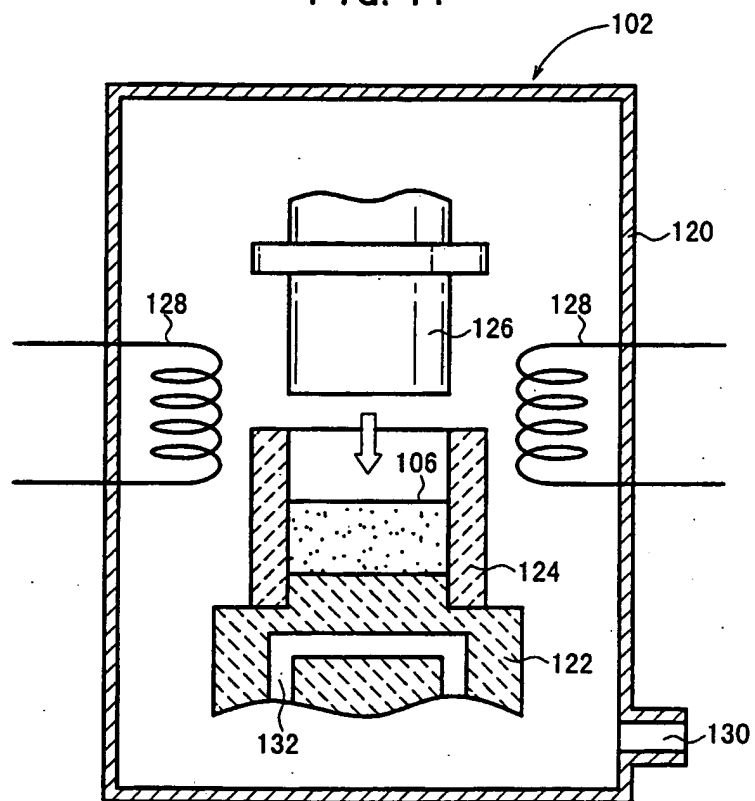
10/40

FIG. 10



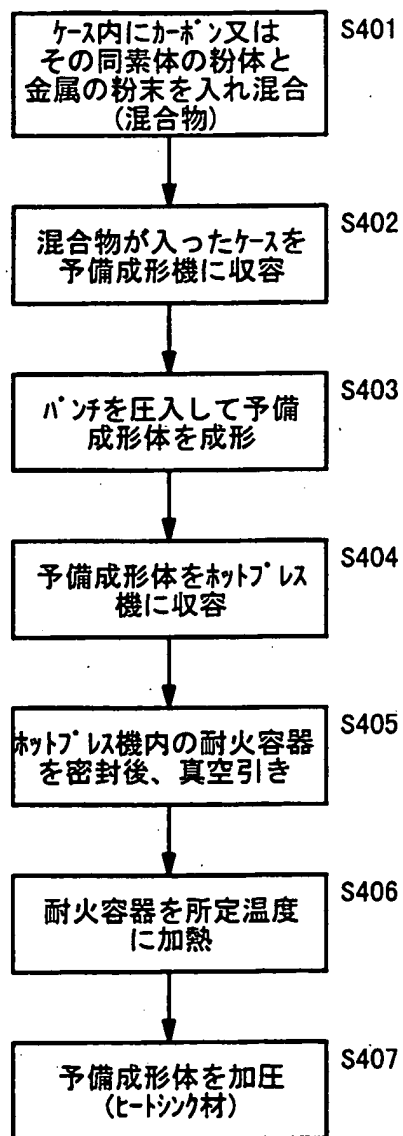
11/40

FIG. 11



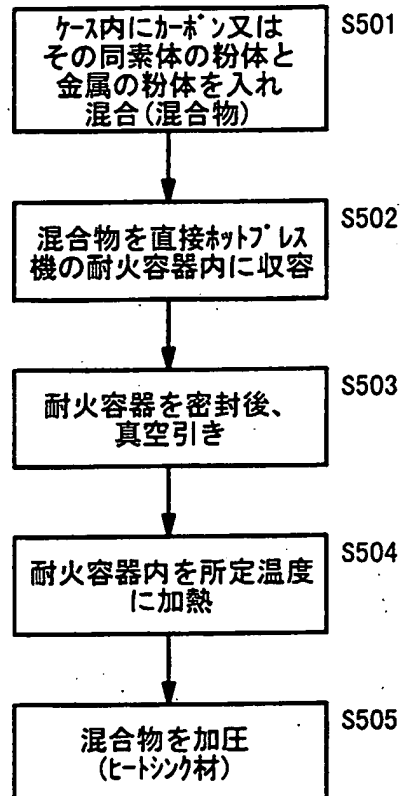
12/40

FIG. 12



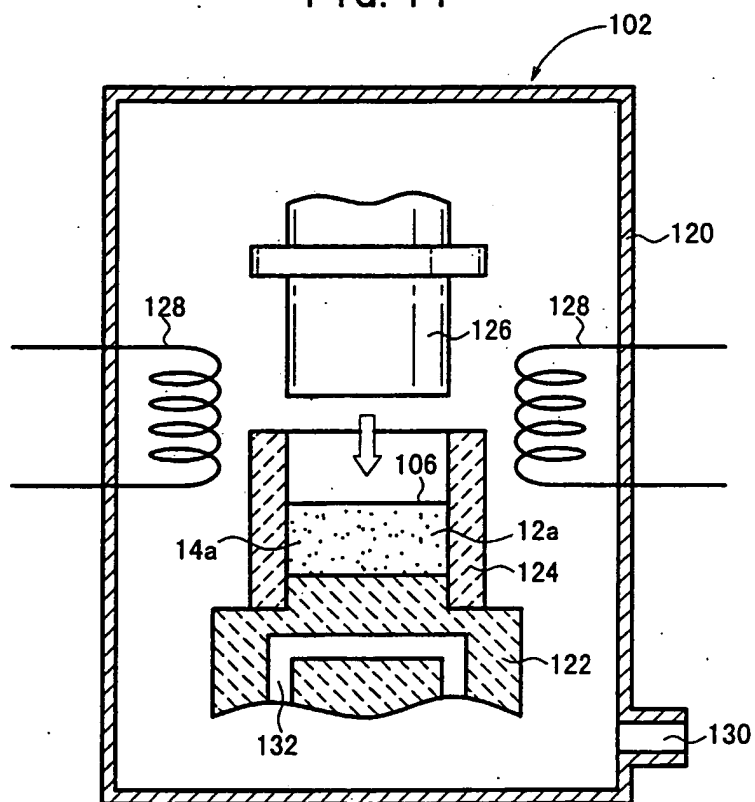
13/40

FIG. 13



14/40

FIG. 14



15/40

FIG. 15

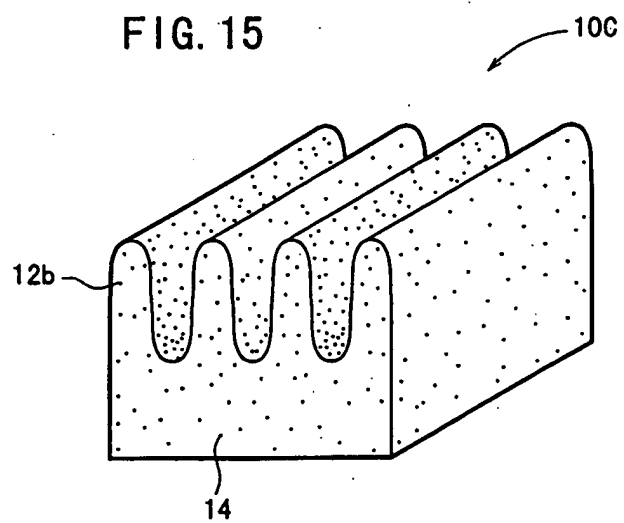


FIG. 16

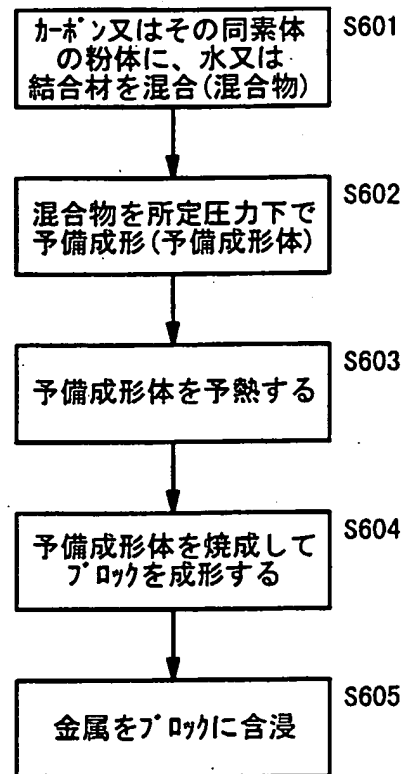


FIG. 17

サンプル	サイズ (mm)	粉末 種類	粉末 粒度 (μm)	充填法	金属	添加 元素	添加量 (wt%)	含浸 方法	含浸 圧力 (Mpa)	熱 伝導率 (W/mK)	熱 膨張率 ($\times 10^{-6}/\text{K}$)	耐水性	効果
PW-1	30 × 120 × 190	type -P	平均 120	無加圧	Cu	Nb	0.001	7'ス	60.0	321	14.0	△	カハイト 生成
PW-2	30 × 120 × 191	type -S	平均 50	無加圧	Cu	Nb	0.001	7'ス	60.0	325	13.5	△	カハイト 生成
PW-3	30 × 120 × 192	type -R	212- 1180	無加圧	Cu	Nb	0.001	7'ス	60.0	305	13.6	△	カハイト 生成
PW-4	30 × 120 × 193	type -P	平均 120	無加圧	Cu	Nb	0.001	7'ス	60.0	321	14.0	△	カハイト 生成
PW-5	30 × 120 × 194	type -P	平均 120	加圧 7MPa	Cu	Nb	0.001	7'ス	60.0	311	11.5	△	カハイト 生成
PW-6	30 × 120 × 195	type -P	平均 120	加圧 25MPa	Cu	Nb	1.001	7'ス	60.0	301	9.5	△	カハイト 生成

FIG. 18

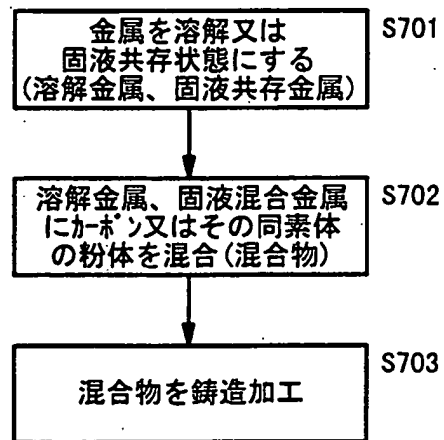


FIG. 19

サンプル	サイズ (mm)	金属	元素	添加量 (wt%)	含浸 方法	熱伝導率 (W/mK)		熱膨張率 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)		曲げ強度 (MPa)		耐水性	効果
						面	厚さ	面	厚さ	面	厚さ		
p1-1	20x60x60	Al	なし	なし	プレス	171	171	5.3	5.5	33.3	53.9	△	なし
p1-2	20x60x60	Cu	なし	なし	プレス	162	170	5.1	5.1	27.4	41.2	◎	なし
p2-1	20x60x60	Cu	Bi	2.00	プレス	168	178	5.0	5.1	28.4	45.1	◎	濡れ性
p2-2	20x60x60	Cu	Sb	0.50		178	186	5.0	5.1	27.4	41.2		
p2-3	20x60x60	Cu	Te	0.50		180	189	5.0	5.1	26.5	39.2		
p2-4	20x60x60	Cu	Te	2.00		172	178	4.9	5.0	25.5	38.2		
p2-5	20x60x60	Cu	Te,Bi	0.5,0.5		169	176	5.0	5.0	26.5	39.2		
p2-6	20x60x60	Cu	Te,Pb	0.5,2.0		172	185	5.0	5.0	27.4	41.2		
p3-1	20x60x60	Cu	Be	1.00	プレス	184	204	5.0	5.0	34.3	57.8	△	カーバイト 生成
p3-2	20x60x60	Cu	Cr	0.50		187	192	5.0	5.0	37.2	58.8		
p3-3	20x60x60	Cu	Mn	0.50		175	181	5.0	5.0	34.3	56.8		
p3-4	20x60x60	Cu	Nb	0.05		187	190	5.0	5.0	34.3	56.8		
p3-5	20x60x60	Cu	Zr	0.50		172	174	5.0	5.0	24.5	40.2		
p4-1	20x60x60	Cu	Te,Ni	0.5,0.5	プレス	165	177	5.0	5.0	27.4	45.1	○	複合添加
p5-1	20x60x60	Cu	なし	なし	ガス	170	188	5.0	5.0	27.4	41.2	◎	なし
p6-1	10x85x180	Cu	Te	2.00	ガス	185	196	5.0	5.1	26.5	39.2	◎	濡れ性
p6-2	20x60x60	Cu	Te	2.00		192	204	5.0	5.0	28.4	42.1		

FIG. 20

サンプル	サイズ (mm)	金属	元素	添加 量 (wt%)	含浸 方法	熱伝導率 (W/mK)		熱膨張率 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)		曲げ強度 (Mpa)		耐水性	効果
						面	厚さ	面	厚さ	面	厚さ		
m1-1	20x60x60	Al	なし	なし	プレス	161	187	4.5	5.6	34.3	56.8	Δ	なし
m1-2	20x60x60	Cu	なし	なし	プレス	145	181	4.5	5.1	28.4	42.1	\odot	なし
m2-1	20x60x60	Cu	Te	0.50	プレス	168	199	4.5	5.1	26.5	39.2	\odot	濡れ性
m3-1	20x60x60	Cu	Be	1.00	プレス	184	213	4.5	5.1	36.3	59.8	Δ	カーハイト 生成
m3-2	20x60x60	Cu	Cr	0.50		170	193	4.5	5.1	37.2	60.8		
m3-3	20x60x60	Cu	Mn	0.50		165	192	4.5	5.1	35.3	57.8		
m3-4	20x120x190	Cu	Nb	0.05		162	192	4.5	5.1	35.3	57.8		
m3-5	20x60x60	Cu	Nb	0.05		169	207	4.5	5.1	35.3	57.8		
m3-6	20x60x60	Cu	Zr	0.50		158	182	4.5	5.1	32.3	52.9		
m5-1	20x60x60	Cu	なし	なし	ガス	166	198	4.5	5.1	25.5	38.2	\odot	なし

FIG. 21

サンプル	サイズ (mm)	金属	添加 元素	添加量 (wt%)	含浸 方法	含浸 圧力 (Mpa)	熱伝導 率 (W/mK)	熱膨張率 ($\times 10^{-6}/K$)		曲げ強度 (MPa)		圧縮強度 (MPa)		耐水性	効果
								面	厚さ	面	厚さ	面	厚さ		
n1-1	20×60×60	Al	無	無	7/12	26.7	156	5.5	6.0	31.4	51.9	46.1	51.0	△	無
n1-4	20×120×190	Al	無	無	7/12	60.0	185	5.5	6.5					△	無
n1-2	20×60×60	Cu	無	無	7/12	26.7	150	3.8	4.5	26.5	39.2			◎	無
n1-3	20×120×190	Cu	無	無	7/12	26.7	147	3.9	4.5	26.5	39.2			◎	無
n2-1	20×60×60	Cu	Te	0.500	7/12	26.7	190	3.8	4.5	26.5	39.2			◎	無
n3-1	20×60×60	Cu	Be	1.000	7/12	26.7	183	3.8	4.5	38.2	62.7			△	カハ・ト・生成
n3-2	20×120×190	Cu	Be	1.000	7/12	156.1	189	4.0	4.6	37.2	61.7			△	カハ・ト・生成
n3-3	20×60×60	Cu	Cr	0.500	7/12	26.7	180	3.8	4.5	36.3	59.8			△	カハ・ト・生成
n3-4	20×60×60	Cu	Mn	0.500	7/12	26.7	176	3.8	4.5	34.3	55.9	42.1	48.0	△	カハ・ト・生成
n3-5	20×60×60	Cu	Nb	0.050	7/12	156.1	198	3.8	4.5	35.3	57.8			△	カハ・ト・生成
n3-6	20×120×190	Cu	Nb	0.050	7/12	26.7	167	3.8	4.5	35.3	57.8			△	カハ・ト・生成
n3-7	20×60×60	Cu	Zr	0.500	7/12	26.7	158	3.8	4.5	34.3	56.8			△	カハ・ト・生成
n3-8	20×120×190	Cu	Nb	0.001	7/12	43.3	182	4.5	3.0			40.2	51.9	△	カハ・ト・生成
n3-9	20×120×190	Cu	Nb	0.001	7/12	60.0	182	4.0	3.0			42.1	51.9	△	カハ・ト・生成
n3-10	20×120×190	Cu	Nb	1.100	7/12	60.0	196	4.0	2.5			51.0	58.8	△	カハ・ト・生成
n3-11	20×120×190	Cu	Be	1.900	7/12	60.0	186	4.5	3.5			57.8	64.7	△	カハ・ト・生成
n3-12	20×120×190	Cu	Ni, Sn	9.4, 6.7	7/12	60.0	190	343				51.9	51.0	◎	複合添加
n3-13	20×120×190	Cu	Ni, Si, P	1.0, 0.23, 0.04	7/12	60.0	190	353				48.0	51.9	○	複合添加
n3-14	20×120×190	Cu	Mn	4.180	7/12	60.0	181	352				51.0	54.9	△	カハ・ト・生成
n3-15	20×120×190	Cu	Cr	2.870	7/12	60.0	195	387				48.0	51.9	△	カハ・ト・生成
n3-16	20×120×190	Cu	Zr	4.490	7/12	60.0	207	367				53.9	63.7	△	カハ・ト・生成
n3-17	20×120×190	Cu	Si	11.300	7/12	26.7	157	333				53.9	60.8	◎	固液範囲拡大
n3-18	20×120×190	Cu	Si	10.900	7/12	60.0	159	316				56.8	68.6	◎	固液範囲拡大
n3-19	20×120×190	Cu	Si	5.170	7/12	153.0	165	343				52.9	62.7	◎	固液範囲拡大
n3-20	20×120×190	Cu	Si	5.300	7/12	43.3	163	325				54.9	60.8	◎	固液範囲拡大
n5-1	20×60×60	Cu	無	無	7/12	26.7	170	320	3.8	4.5	26.5	39.2		◎	無
n7-1	20×120×190	Al	Be	2.000	7/12	60.0	177	332	5.0	6.5		57.8	62.7	△	カハ・ト・生成
n7-2	20×120×190	Al	Si	5.000	7/12	60.0	169	329	5.0	6.5		50.0	61.7	◎	固液範囲拡大
n7-3	20×120×190	Al	Si	12.000	7/12	60.0	181	327	5.0	6.5		56.8	68.6	◎	固液範囲拡大

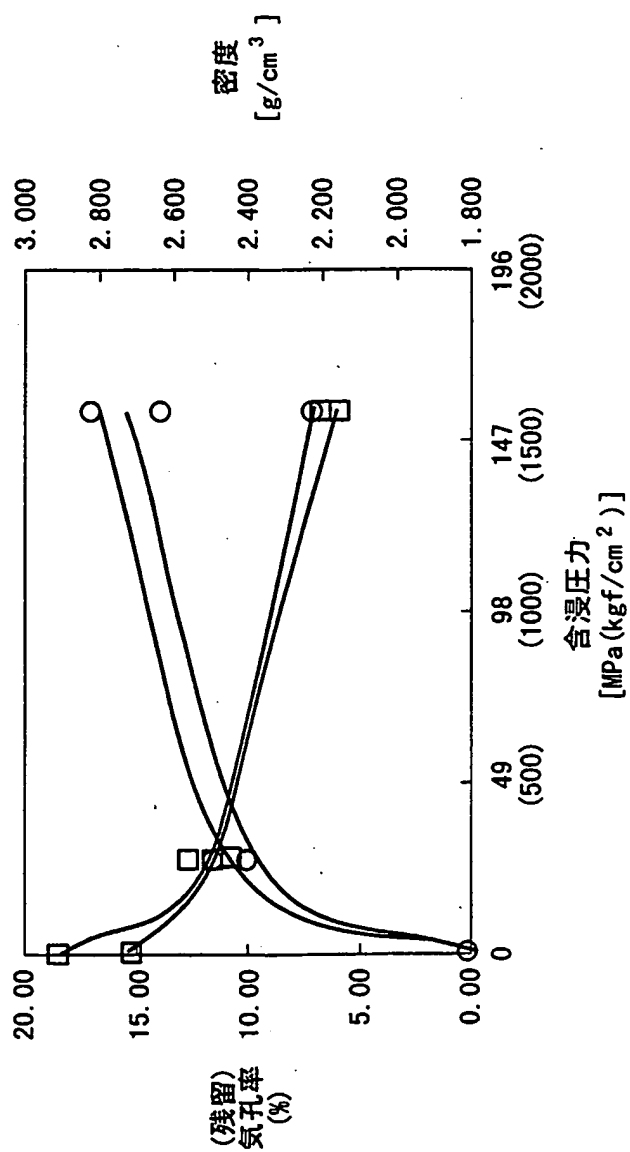
FIG. 22

カーボンの 種類	熱伝導率 (W/mK)		熱膨張率 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)		曲げ強度 (MPa)	
	面方向	厚さ方向	面方向	厚さ方向	面方向	厚さ方向
P	150	160	3.2	3.2	34.3	49.0
M	140	168	3.2	3.2	29.4	44.1
N	150	255	1.8	2.3	14.7	29.4

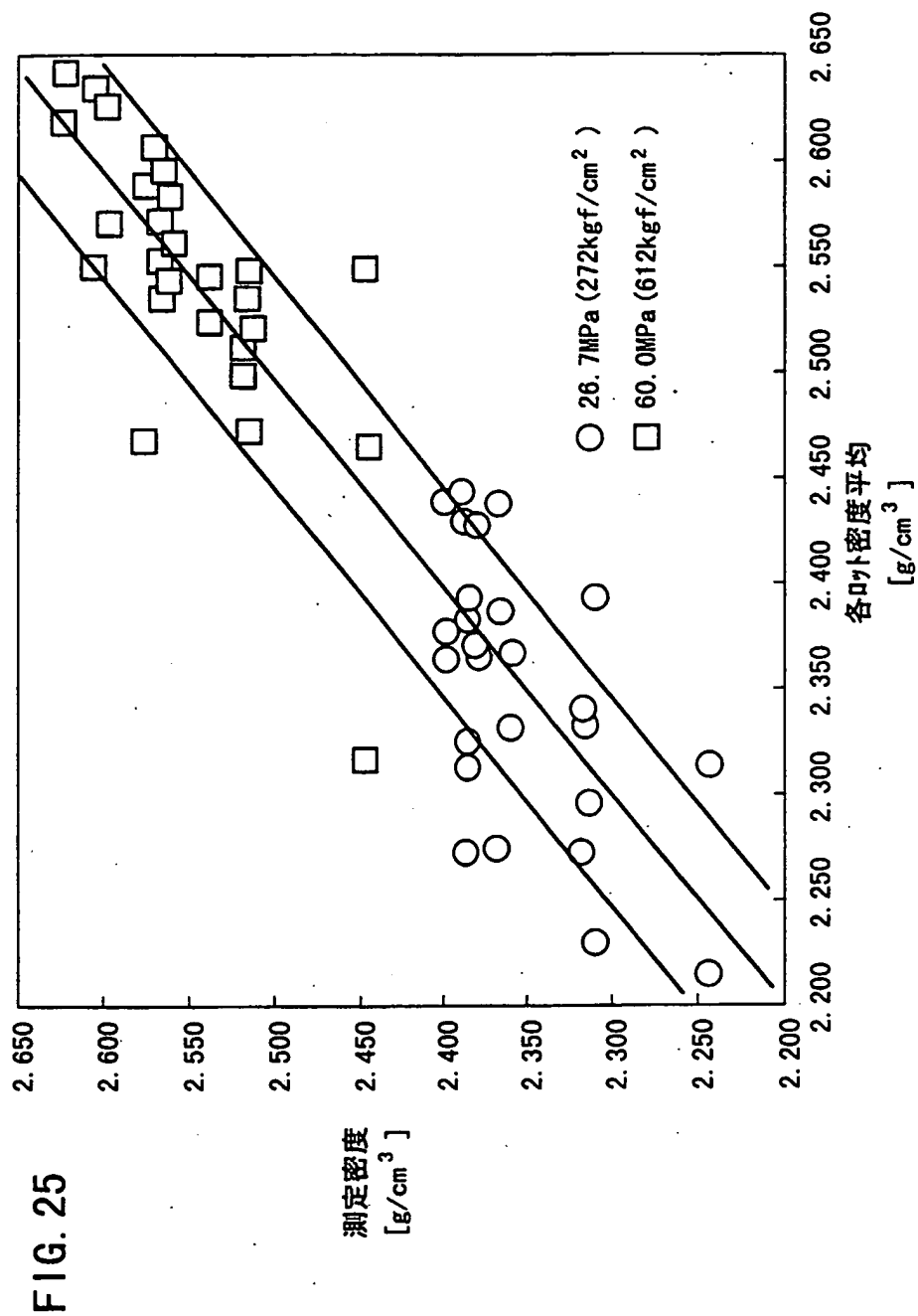
FIG. 23

サンプル	サイズ (mm)	金属	元素	添加 量 (wt%)	含浸 方法	熱伝導率 (W/mK)		熱膨張率 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)		曲げ強度 (MPa)		耐 水 性	効果
						面	厚さ	面	厚さ	面	厚さ		
p1-2	20x60x60	Cu	なし	なし	ﾌﾞﾚｽ	162	170	5.1	5.1	27.4	41.2	◎	なし
p5-1	20x60x60				ｶﾞｽ	170	188	5.0	5.0	27.4	41.2		
p2-4	20x60x60	Cu	Te	2	ﾌﾞﾚｽ	172	178	4.9	5.0	25.5	38.2	◎	濡れ性
p6-2	20x60x60	Cu	Te	2	ｶﾞｽ	192	204	5.0	5.0	28.4	42.1		
m1-2	20x60x60	Cu	なし	なし	ﾌﾞﾚｽ	145	181	4.5	5.1	28.4	42.1	◎	なし
m5-1	20x60x60				ｶﾞｽ	166	198	4.5	5.1	25.5	38.2		
n1-2	20x60x60	Cu	なし	なし	ﾌﾞﾚｽ	150	310	3.8	4.5	26.5	39.2	◎	なし
n5-1	20x60x60	Cu			ｶﾞｽ	170	320	3.8	4.5	26.5	39.2		

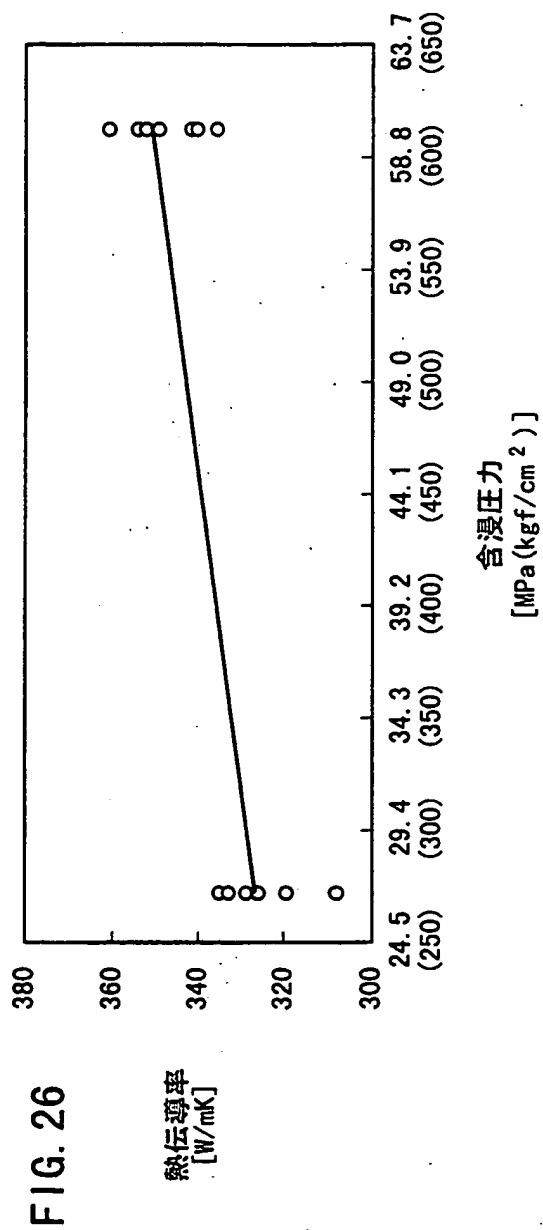
FIG. 24



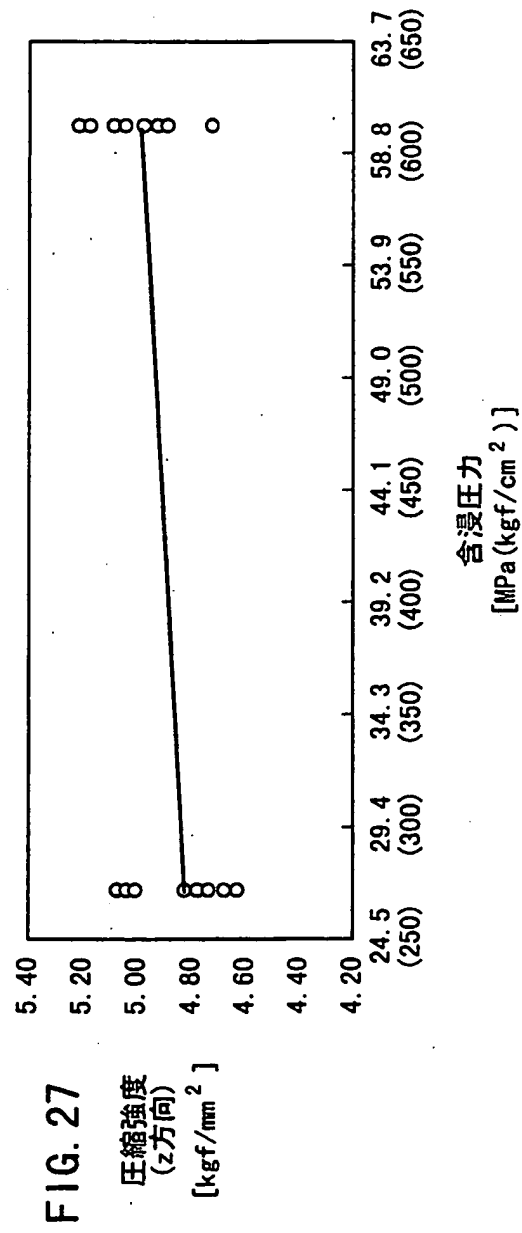
25/40



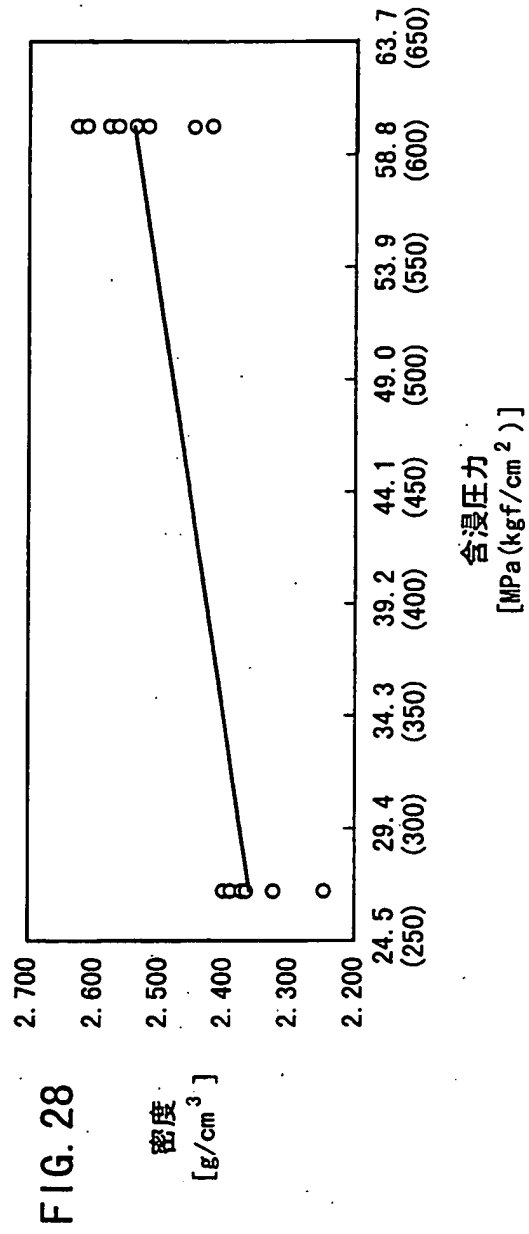
26/40



27/40



28/40



29/40

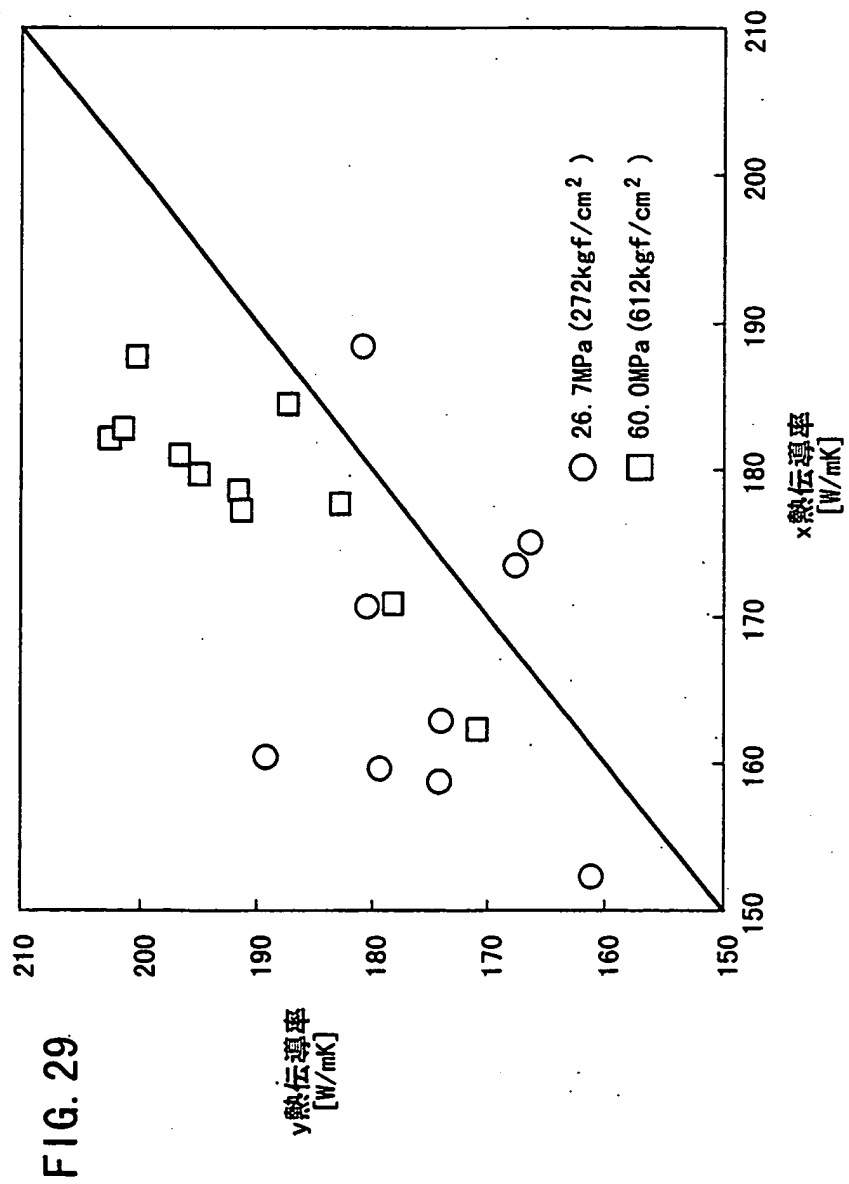
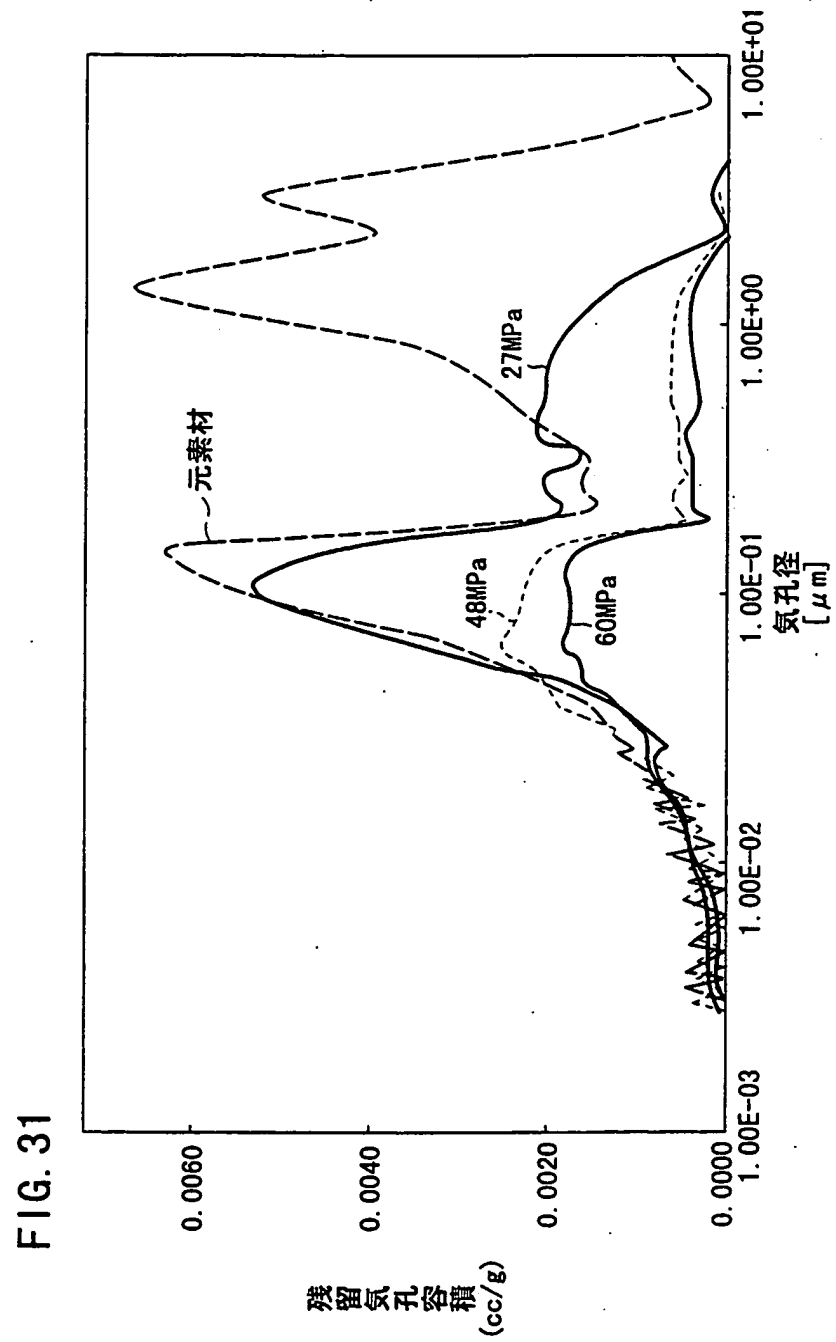


FIG. 30

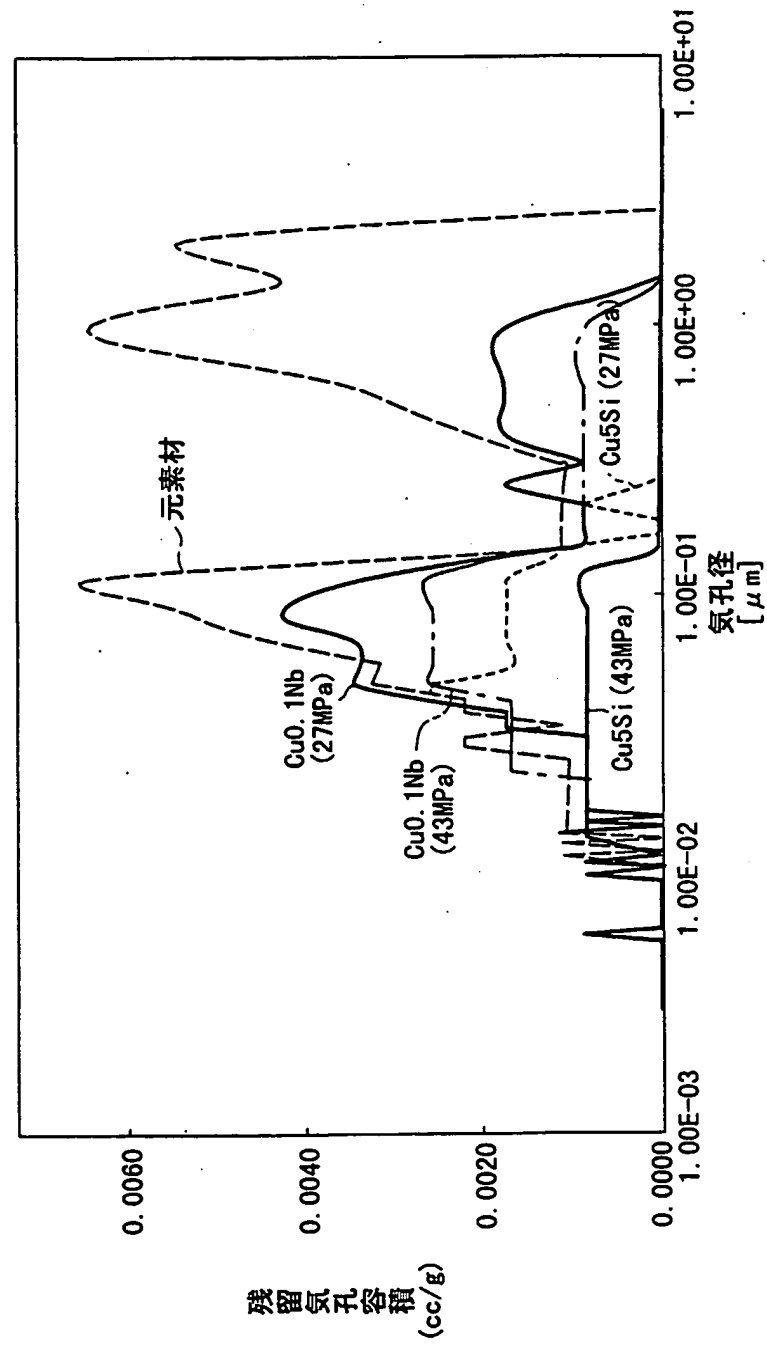
No.	気孔率 [%]	気孔径 [μm]	Ni めっき	Si 含浸	含浸 温度 [$^{\circ}\text{C}$]	加圧力 [Mpa (kgf/cm 2)]	加圧時間 [sec]	冷却速度 [$^{\circ}\text{C}/\text{min}$]	Si/Cuの 反応状況	含浸状況
サンプル 1	35	70	無	無	1130	0.78(8)	60	260	Δ	Δ
サンプル 2	44	22	無	無	1130	7.84(80)	20	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 3	59	42	無	有	1130	11.8(120)	10	480	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 4	15	5	有	無	1130	23.5(240)	10	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 5	59	42	無	有	1180	0.78(8)	60	900	Δ	Δ
サンプル 6	15	5	無	無	1180	3.92(40)	20	480	\bigcirc	Δ
サンプル 7	59	42	無	有	1180	11.8(120)	10	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 8	44	22	無	無	1180	23.5(240)	10	620	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 9	44	22	無	有	1230	0.78(8)	20	480	\bigcirc	Δ
サンプル 10	59	42	有	無	1230	3.92(40)	35	790	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 11	35	70	無	無	1230	7.84(80)	100	620	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 12	44	22	無	有	1230	23.5(240)	5	620	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 13	59	42	無	無	1280	3.92(40)	50	790	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 14	35	70	無	無	1280	7.84(80)	35	480	Δ	\bigcirc
サンプル 15	44	22	有	無	1280	7.84(80)	5	620	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 16	59	42	無	有	1280	11.8(120)	10	790	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 17	20	21	無	無	1150	156.1	3	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 18	20	19	無	無	1150	156.1	5	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 19	20	23	無	無	1140	69.3	5	900	\bigcirc	\bigcirc
サンプル 20	20	22	無	無	1145	26.7	7	900	\bigcirc	\bigcirc

注) Si/Cuの反応 : \bigcirc 反応無し \bigcirc 反応少 Δ 反応大
Cuの含浸状況 : \bigcirc 含浸良好 \bigcirc 含浸やや不十分 Δ 含浸不十分



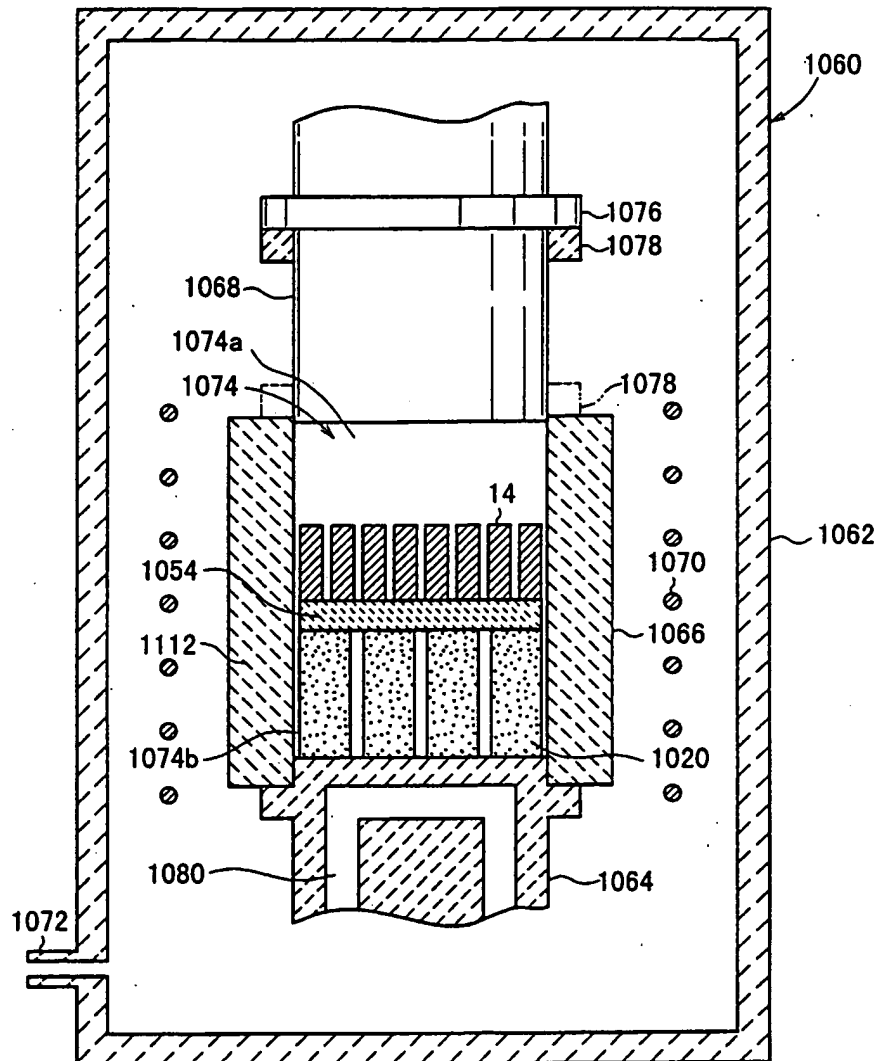
32/40

FIG. 32



33/40

FIG. 33



34/40

FIG. 34

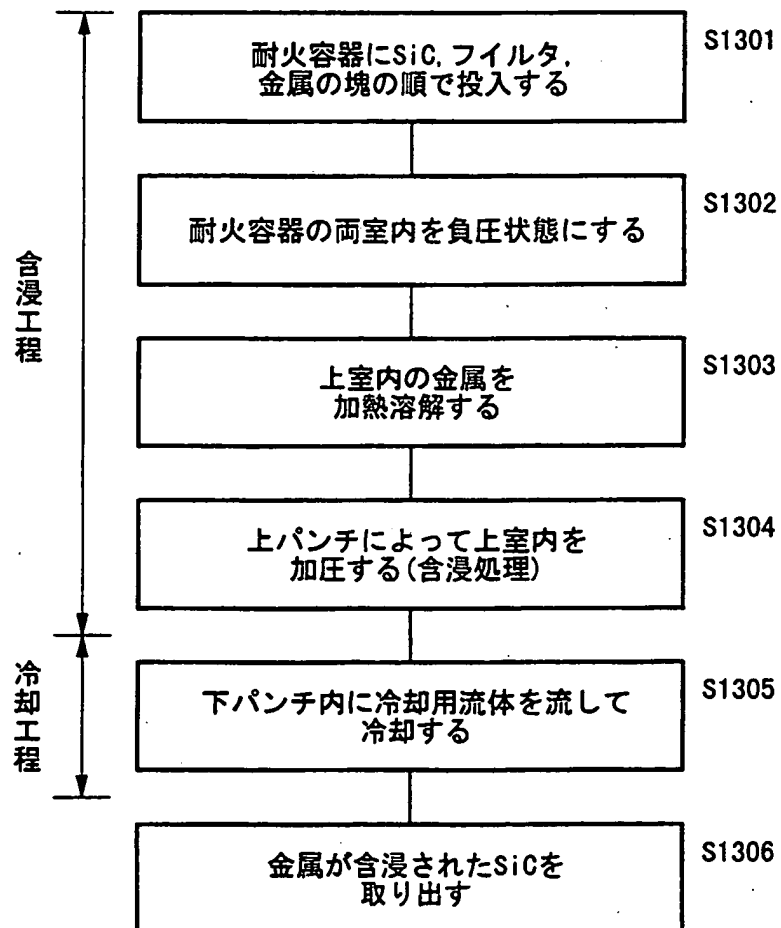


FIG. 35A

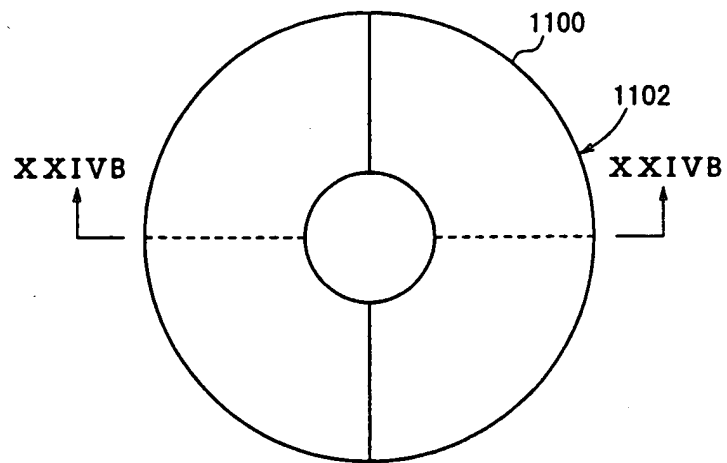
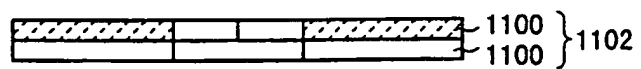
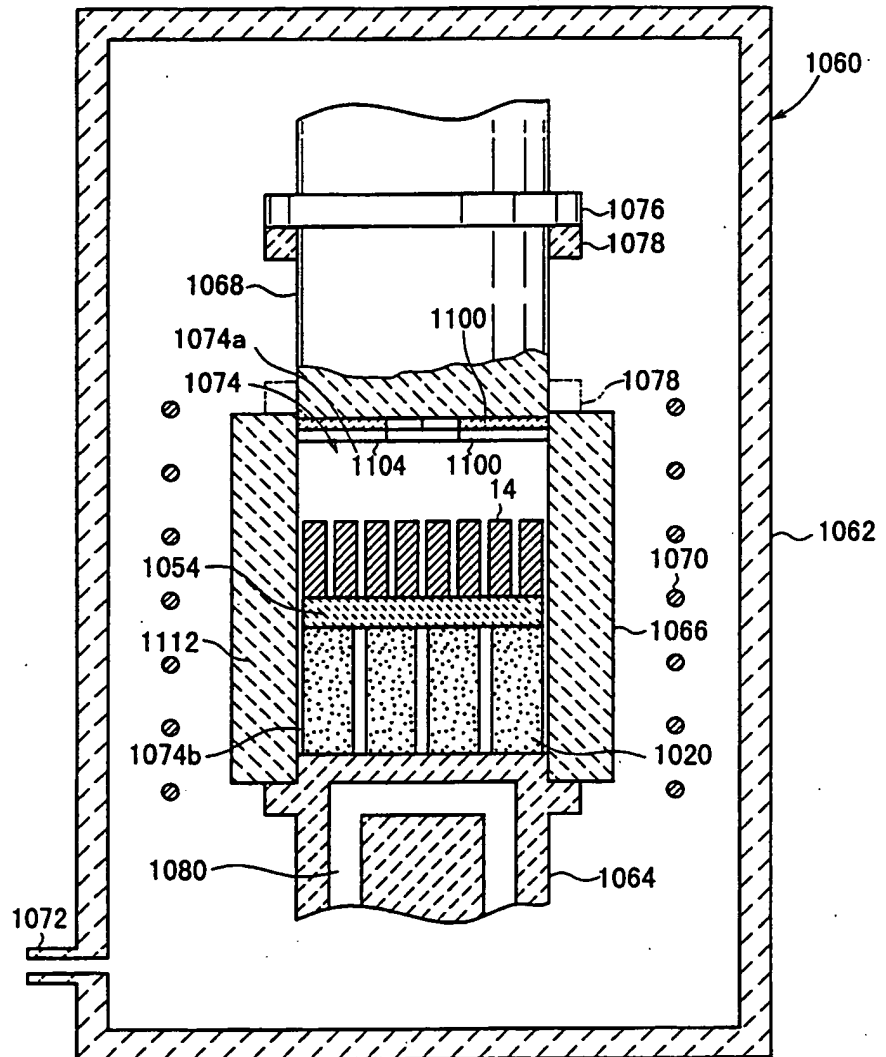


FIG. 35B



36/40

FIG. 36



37/40

FIG. 37

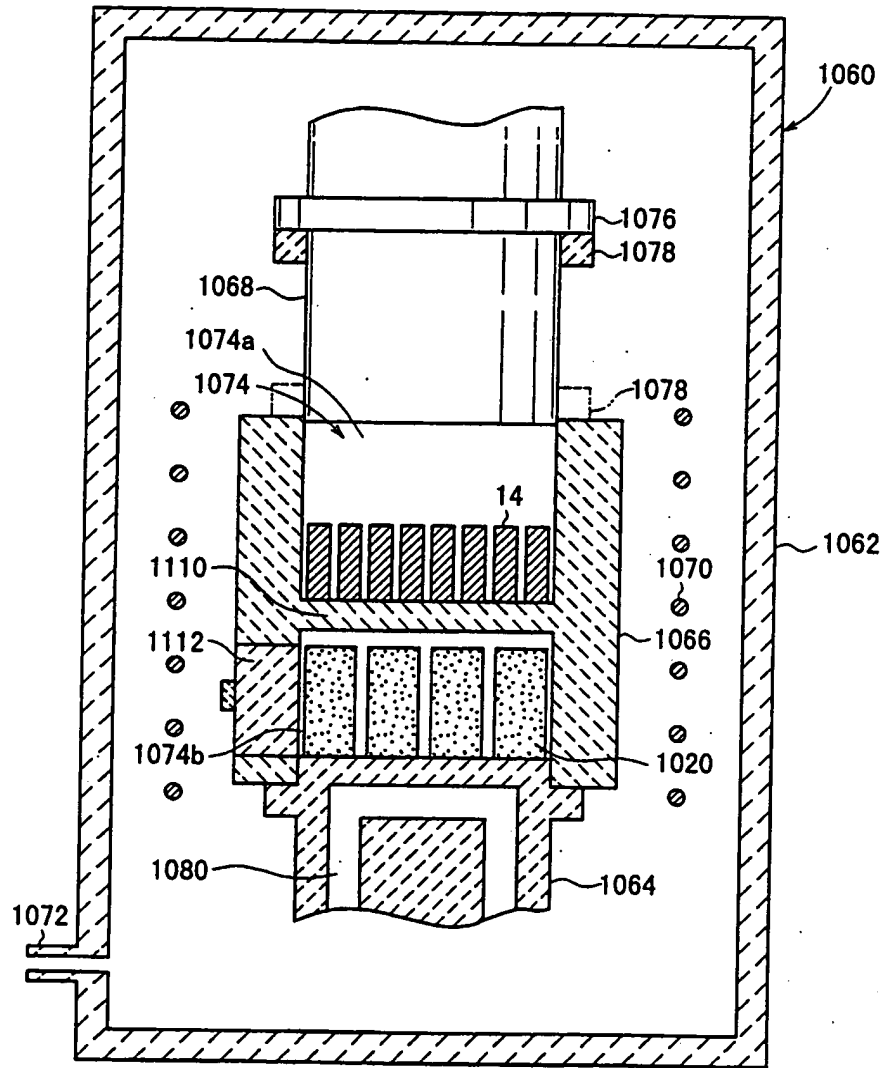
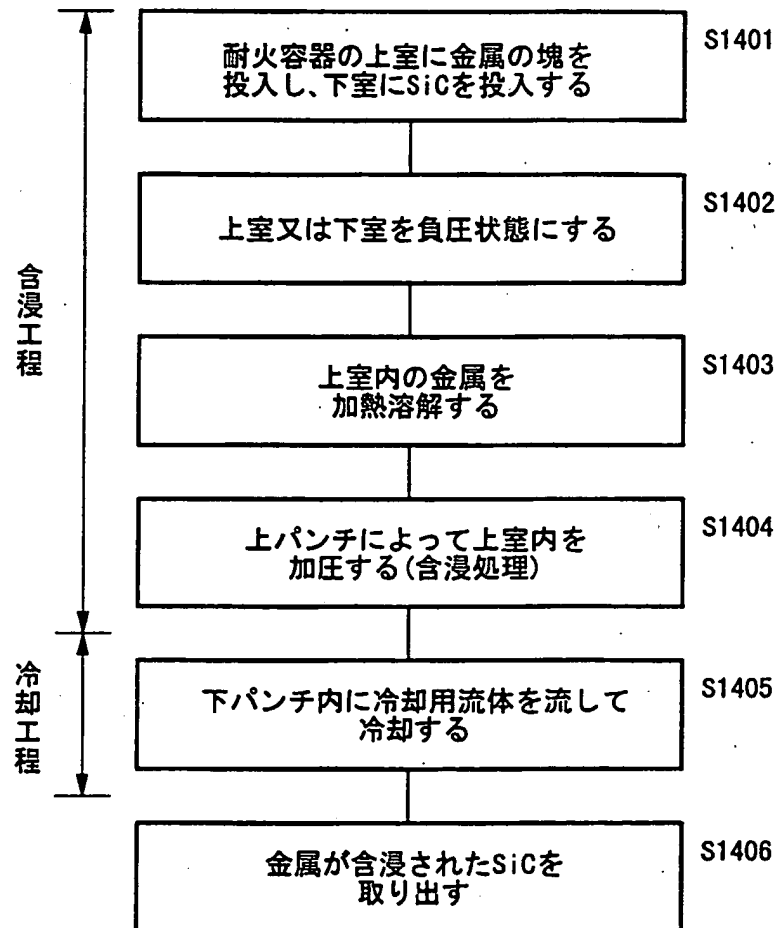
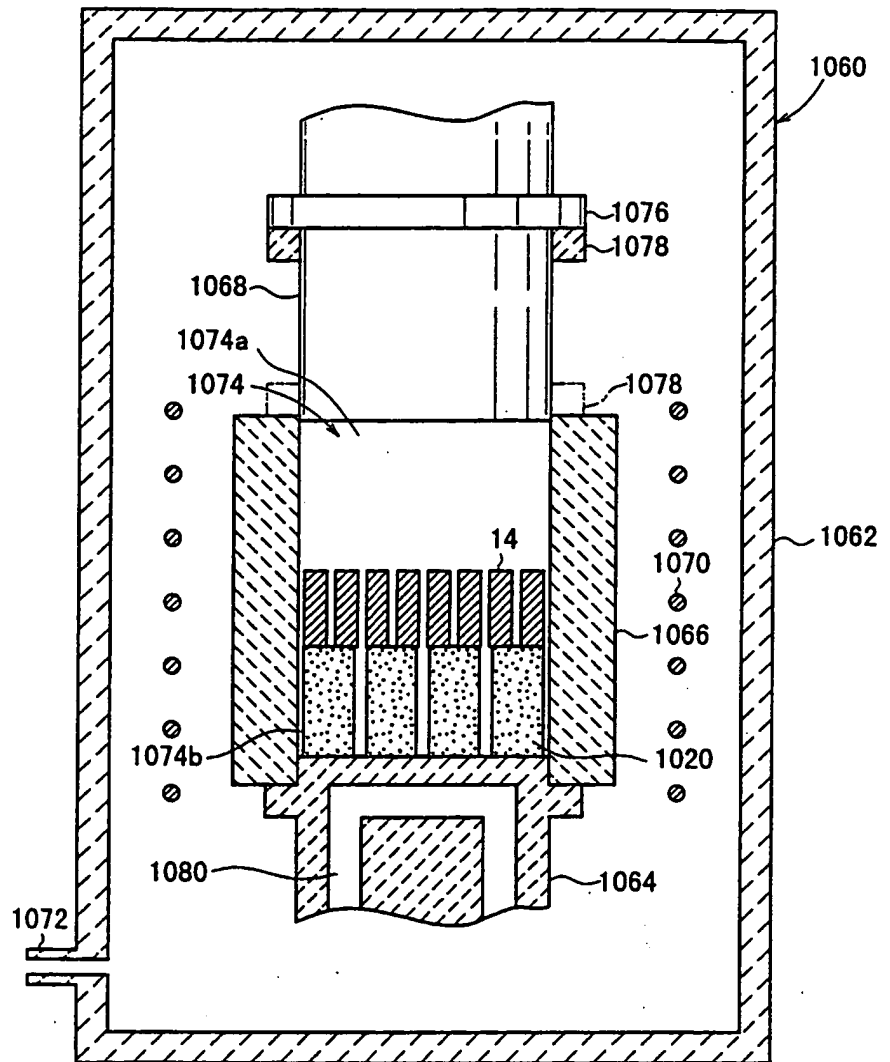


FIG. 38



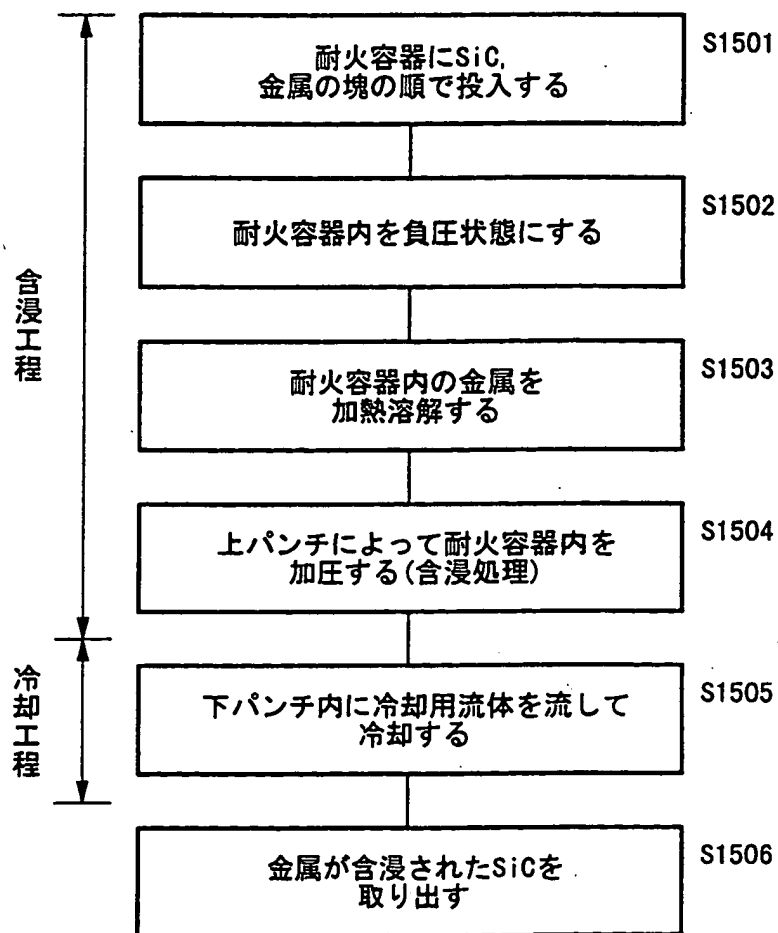
39/40

FIG. 39



40/40

FIG. 40



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/09133

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ H01L23/373

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ H01L23/373

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2001	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 11-67991, A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 09 March, 1999 (09.03.99), Claims 1 to 15; Par. Nos. [0025] to [0027], [0043] to [0062]; Figs. 1 to 7 (Family: none)	1, 2, 4-8, 11-15, 18-30, 35-65
X	JP, 4-329845, A (PECHINEY RECHERCHE), 18 November, 1992 (18.11.92) & EP, 504532, A1	1, 3, 5-17, 20-25, 44-50, 57, 58, 65
Y	Same information as indicated above for applicant: (PECHINEY RECHERCHE)	26-30, 51-56

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
28 March, 2001 (28.03.01)

Date of mailing of the international search report
10 April, 2001 (10.04.01)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
Int. cl. H01L23/373

B. 調査を行った分野
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
Int. cl. H01L23/373

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの
日本国実用新案公報 1926-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2001年
日本国登録実用新案公報 1994-2001年
日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリ*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 11-67991, A (住友電気工業株式会社) 9. 3月. 1999 (09. 03. 99) 請求項1-15, 段落 [0025] - [0027], 段落 [0043] - [0062], 図1-7 (ファミリーなし)	1, 2, 4-8, 11- 15, 18-30, 35- 65
X	JP, 4-329845, A (ペシネ・ルシエルシュ) 18. 11 月. 1992 (18. 11. 92) & EP, 504532, A1	1, 3, 5-17, 20- 25, 44-50, 57, 58, 65
Y	同上	26-30, 51-56

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリ

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日
28. 03. 01

国際調査報告の発送日
10.04.01

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
市川 裕 司
4R 7128
電話番号 03-3581-1101 内線 3425